











**ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE****Publication number:** WO2004034751 (A1)**Publication date:** 2004-04-22**Inventor(s):** ARAKANE TAKASHI [JP]; IWAKUMA TOSHIHIRO [JP];  
HOSOKAWA CHISHIO [JP]**Applicant(s):** IDEMITSU KOSAN CO [JP]; ARAKANE TAKASHI [JP];  
IWAKUMA TOSHIHIRO [JP]; HOSOKAWA CHISHIO [JP]**Classification:****- international:** C09K11/06; H01L51/00; H01L51/30; H01L51/50;  
H05B33/14; H05B33/22; C09K11/06; H01L51/00;  
H01L51/05; H01L51/50; H05B33/14; H05B33/22; (IPC1-  
7): H05B33/22; H05B33/14**- European:** H01L51/50J2; C09K11/06; H01L51/00M6D; H01L51/00M6H;  
H01L51/00M6H14; H01L51/00M12F2; H01L51/50E3;  
H05B33/14; H05B33/22**Application number:** WO2003JP12598 20031001**Priority number(s):** JP20020296024 20021009**Also published as:** EP1551206 (A1)  
 EP1551206 (A4)  
 US2006257684 (A1)  
 KR20050074478 (A)  
 CN1703937 (A)**Cited documents:** JP2002352957 (A)  
 JP2003077673 (A)  
 JP2002151267 (A)  
 JP2002056976 (A)  
 WO0251206 (A2)

more &gt;&gt;

**Abstract of WO 2004034751 (A1)**

An organic electroluminescent device having, between a cathode and an anode, a light-emitting layer which is made of at least a phosphorescent material and a host material, has an electron injection layer arranged between the light-emitting layer and the cathode and having a junction with the light-emitting layer. The light-emitting layer has electron transport properties and the ionization potential of the host material is 5.9 eV or less. The energy gap of an electron transport material in the electron injection layer is smaller than that of the host material in the light-emitting layer, or the triplet energy of the electron transport material in the electron injection layer is smaller than that of the host material in the light-emitting layer. The organic electroluminescent device uses light emission of phosphorescence and has high luminous efficiency.

---

Data supplied from the esp@cenet database — Worldwide

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2004 年 4 月 22 日 (22.04.2004)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2004/034751 A1

- (51) 国際特許分類: H05B 33/22, 33/14 (IWAKUMA, Toshihiro) [JP/JP]; 〒299-0205 千葉県袖ヶ浦市上泉 1280 番地 Chiba (JP). 細川 地潮 (HOSOKAWA, Chishio) [JP/JP]; 〒299-0205 千葉県袖ヶ浦市上泉 1280 番地 Chiba (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2003/012598
- (22) 国際出願日: 2003 年 10 月 1 日 (01.10.2003)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ: 特願2002-296024 2002 年 10 月 9 日 (09.10.2002) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒100-8321 東京都千代田区丸の内三丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 荒金 崇士 (ARAKANE, Takashi) [JP/JP]; 〒299-0205 千葉県袖ヶ浦市上泉 1280 番地 Chiba (JP). 岩隈 俊裕
- (74) 代理人: 大谷 保, 外 (OHTANI, Tamotsu et al.); 〒105-0001 東京都港区虎ノ門三丁目 2 番 2 号 ブリヂストン虎ノ門ビル 6 階 大谷特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): CN, JP, KR, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) Abstract: An organic electroluminescent device having, between a cathode and an anode, a light-emitting layer which is made of at least a phosphorescent material and a host material, has an electron injection layer arranged between the light-emitting layer and the cathode and having a junction with the light-emitting layer. The light-emitting layer has electron transport properties and the ionization potential of the host material is 5.9 eV or less. The energy gap of an electron transport material in the electron injection layer is smaller than that of the host material in the light-emitting layer, or the triplet energy of the electron transport material in the electron injection layer is smaller than that of the host material in the light-emitting layer. The organic electroluminescent device uses light emission of phosphorescence and has high luminous efficiency.

(57) 要約: 陰極と陽極間に、少なくとも燐光性の発光材料とホスト材料からなる発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層と陰極との間に、発光層と接合した電子注入層を有し、発光層が電子輸送性で、前記ホスト材料のイオン化ポテンシャルが 5.9 eV 以下であり、電子注入層中の電子輸送材料のエネルギーギャップが、発光層中のホスト材料のエネルギーギャップより小さいか、又は電子注入層中の電子輸送材料の三重項エネルギーが、発光層中のホスト材料の三重項エネルギーより小さい有機エレクトロルミネッセンス素子であり、燐光性の発光を用い、発光効率が高い有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

WO 2004/034751 A1

## 明 細 書

## 有機エレクトロルミネッセンス素子

## 技術分野

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、特に、燐光性の発光を利用し、低い駆動電圧で、発光効率が高い有機エレクトロルミネッセンス素子に関するものである。

## 背景技術

有機エレクトロルミネッセンス素子（以下エレクトロルミネッセンスをELと略記することがある）は、電界を印加することより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子の再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。イーストマン・コダック社のC. W. Tangらによる積層型素子による低電圧駆動有機EL素子の報告（C. W. Tang, S. A. Vanslyke, アプライドフィジックスレターズ(Applied Physics Letters), 51巻、913頁、1987年等）がなされて以来、有機材料を構成材料とする有機EL素子に関する研究が盛んに行われている。Tangらは、トリス（8-ヒドロキシキノリノールアルミニウム）を発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いている。積層構造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高めること、陰極より注入された電子をブロックして再結合により生成する励起子の生成効率を高めること、発光層内で生成した励起子を閉じ込めること等が挙げられる。この例のように有機EL素子の素子構造としては、正孔輸送（注入）層、電子輸送発光層の2層型、又は正孔輸送（注入）層、発光層、電子輸送（注入）層の3層型等がよく知られている。こうした積層型構造素子では注入された正孔と電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。

有機EL素子の発光材料としてはトリス（８－キノリノラート）アルミニウム錯体等のキレート錯体、クマリン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ビスチリルアアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等の発光材料が知られており、それらからは青色から赤色までの可視領域の発光が得られることが報告されており、カラー表示素子の実現が期待されている（例えば、特開平８－２３９６５５号公報、特開平７－１３８５６１号公報等参照）。

また、近年、有機EL素子の発光層に、発光材料の他に有機リン光材料を利用することも提案されている（例えば、D.F.O'Brien and M.A.Baldo et al "Improved energy transfer in electrophosphorescent devices" Applied Physics letters Vol. 74 No. 3, pp442-444, January 18, 1999 ; M.A.Baldo et al "Very high-efficiency green organic light-emitting devices based on electrophosphorescence" Applied Physics letters Vol. 75 No. 1, pp4-6, July 5, 1999等参照）。

このように有機EL素子の発光層において、有機リン光材料の励起状態の一重項状態と三重項状態とを利用することにより、高い発光効率が達成されている。有機EL素子内で電子と正孔が再結合する際にはスピン多重度の違いから一重項励起子と三重項励起子とが１：３の割合で生成すると考えられているので、燐光性の発光材料を用いれば蛍光のみを使った素子の３～４倍の発光効率の達成が考えられる。

このような有機EL素子においては、３重項の励起状態又は３重項の励起子が消光しないように順次、陽極、正孔輸送層、有機発光層、電子輸送層（正孔阻止層）、電子注入層、陰極のように層を積層する構成が用いられてきた（例えば、米国特許第６，０９７，１４７号明細書、国際特許公報WO 01/41512号明細書参照）。この構成を有する有機EL素子には、以下のような特徴があった。

①電子注入層と発光層を接合すると、励起状態が消光するため、発光層よりエネ

ルギーギャップが広いか又は発光層の三重項エネルギーより大きな三重項エネルギーを保有する正孔阻止層を用いた。

②正孔阻止層は有機発光層からの正孔の移動を制限し、正孔を発光層中に効率よく蓄積することによって、電子との再結合確率を向上させることが可能であった。

③正孔阻止層と陰極金属を直接接合すると寿命や効率などの性能が著しく低くなるため正孔阻止層と陰極の間にエネルギーギャップが正孔阻止層より小さい電子注入層を設ける必要があった。

しかしながら、これら従来の電子注入構成には問題があることが判明した。すなわち、正孔阻止層はエネルギーギャップが広く他層からの電荷注入輸送に対してはエネルギー障壁として働き抵抗が大きいため、駆動電圧が上昇した。さらに正孔阻止層に用いられる多くの化合物は、高い正孔阻止能を保有していたが劣化しやすく長寿命な素子を与えることができなかった。

また、従来の素子として、電子注入層と発光層を直接接合し、電子注入層を形成する電子輸送材料の三重項エネルギーを発光層を形成するホスト材料の三重項エネルギーより大きくするようにした素子も知られている（例えば、特開2002-100476号公報）。しかしながら、電子輸送材料の三重項エネルギーを大きくした素子は、消光を免れるものの一重項エネルギーが三重項エネルギーより一般的に0.3 eV以上大きいため、結果として電子輸送材料のエネルギーギャップが極めて大きく3 eV以上となる。このような場合、陰極からの電子注入のエネルギー障壁は極めて大きく駆動電圧の高電圧化が生じ、またエネルギー障壁が大きいために、電流を注入しつづけると劣化が生じ易く、素子の寿命が短いなどの問題があった。

さらに、発光層のホスト材料を電子輸送材料で形成した素子も知られている。（例えば、国際特許公報WO 01/93642号明細書）。しかしながら、この素子に用いられたホスト材料はイオン化ポテンシャル5.9 eV以上であったた

め、ホスト材料に正孔を注入することができず、ホスト材料が正孔を輸送せず駆動電圧が高くなるという問題があった。

#### 発明の開示

本発明は、前記の課題を解決するためになされたもので、燐光性の発光を用いた有機EL素子において、低い駆動電圧で、発光効率が高い有機EL素子を提供することを目的とする。

本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、第一の発明では、少なくとも燐光性の発光材料とホスト材料からなる発光層と陰極との間に、発光層と接合した電子注入層を設けて正孔阻止層は省略し、さらに、電子注入層中の電子輸送材料のエネルギーギャップを、発光層中のホスト材料のエネルギーギャップより小さくした。当業者の従来の理解では、このようにすることで、発光層で生じた励起状態が電子注入層により失活し、効率の極めて低い素子しか得られない。しかし、本発明ではさらに、発光層を電子輸送性とすることにより、電子と正孔が再結合する領域が電子注入層と発光層との界面から離れ失活が免れる。さらには、発光層中のホスト材料に良好に正孔が注入できるようにホスト材料のイオン化ポテンシャルを5.9 eV以下としたことにより、従来の有機EL素子のように正孔阻止層を用いずに高効率な素子が得られ、さらに発光層中のホスト材料に正孔が注入でき輸送できるので駆動電圧を低下させることができ、劣化しやすい正孔阻止層を用いないので長寿命の素子を得ることができる。また、有機EL素子の構成が簡素になったため容易に作製可能となった。さらに、エネルギーギャップが発光層中のホスト材料のエネルギーギャップより小さい電子輸送材料を含有させたため、陰極からの電子注入が促進される効果もあり、低電圧化の効果もあることが確認された。

また、第二の発明では、少なくとも燐光性の発光材料とホスト材料からなる発光層と陰極との間に、発光層と接合した電子注入層を設け、電子注入層中の電子

輸送材料の三重項エネルギーを、発光層中のホスト材料の三重項エネルギーより小さくした。これにより、電子輸送材料のエネルギーギャップを狭くし、陰極からの電子注入を良好とすることが可能となる。当業者の従来の理解では、このようにすることで、発光層で生じた励起状態が電子注入層により失活し、効率の極めて低い素子しか得られない。しかし、本発明ではさらに、発光層を電子輸送性とすることにより、電子と正孔が再結合する領域が電子注入層と発光層との界面から離れ失活が免れる。さらには、発光層中のホスト材料に良好に正孔が注入できるようにホスト材料のイオン化ポテンシャルを $5.9\text{ eV}$ 以下としたことにより、従来の有機EL素子と異なり、エネルギーギャップが広い電子注入層を用いずに高効率な素子を得ることが可能になり、電子注入のエネルギー障壁を小さくした効果として素子の寿命が改善された。さらに発光層中のホスト材料に正孔が注入でき輸送できるので駆動電圧を低下させることができる。また、有機EL素子の構成が簡素になったため容易に作製可能となった。

すなわち、本第一発明は、陰極と陽極間に、少なくとも燐光性の発光材料とホスト材料からなる発光層を有する有機EL素子において、発光層と陰極との間に、発光層と接合した電子注入層を有し、発光層が電子輸送性で、前記ホスト材料のイオン化ポテンシャルが $5.9\text{ eV}$ 以下であり、電子注入層中の電子輸送材料のエネルギーギャップが、発光層中のホスト材料のエネルギーギャップより小さいことを特徴とする有機EL素子を提供するものである。

また、本第二発明は、陰極と陽極間に、少なくとも燐光性の発光材料とホスト材料からなる発光層を有する有機EL素子において、発光層と陰極との間に、発光層と接合した電子注入層を有し、発光層が電子輸送性で、前記ホスト材料のイオン化ポテンシャルが $5.9\text{ eV}$ 以下であり、電子注入層中の電子輸送材料の三重項エネルギーが、発光層中のホスト材料の三重項エネルギーより小さいことを特徴とする有機EL素子を提供するものである。

前述のように、本第一発明及び本第二発明（以下、本発明）においては、発光

層が電子輸送性であることが必須であるが、本発明で電子輸送性であるとは、下記（１）又は（２）のいずれかであることをいう。

（１）発光層中のホスト材料の電子移動度が  $10^{-3} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$  以上（好ましくは、 $10^{-5} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$  以上）である化合物である。電子移動度に関しては飛行時間法（TOF）又は空間電荷制限電流の過渡測定により計測することができる。TOF法については、シンセティック メタルズ（Synth. Met.）111/112, (2000) 331頁に記載され、空間電荷制限電流の過渡測定については、Electrical Transport in Solids, Pergamon Press, 1981年、第346～348頁の記載がある。

（２）発光層の陽極側の領域における正孔と電子の再結合が陰極側における再結合より多い。これは発光層の領域を２分して、（陰極／電子注入層／陰極側発光層／陽極側発光層／正孔輸送層／陽極側）という層構成とした場合において、陽極側発光層のみに燐光発光性化合物を添加した素子ANと陰極側発光層のみに燐光発光性化合物を添加した素子CAを比較した場合、素子ANの方が再結合が大きい場合に相当する。その際、電子注入層や正孔輸送層により発光層の励起状態が消光しない様に留意すべきである。また、発光層の陽極側界面のみに燐光発光性化合物を添加した素子AN' と陰極側界面のみに燐光発光性化合物を添加した素子CA' の効率を比較して素子AN' の効率が大きい場合に発光層は電子輸送性であると言える。

なお、本発明における電子輸送性とは正孔輸送性がないことを意味しない。したがって電子輸送性であるが、正孔移動度を計測した際、 $10^{-7} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$  より大きい値を保有していても問題ない。

本発明の有機EL素子において、還元性ドーパントが、電子注入層に添加されているか、又は陰極と該陰極と接合する層との界面領域に添加されていると好ましい。このようにすることで素子の電圧を低くすることができる。

本発明の有機EL素子において、陰極と陽極間に、燐光性の発光材料が添加されている正孔輸送層を有すると好ましい。このようにすることで正孔輸送層で生



じた励起状態も発光につながり一段と発光効率が高くなる。

また、前記正孔輸送層中の正孔輸送材料の三重項エネルギーが、前記発光層中の燐光性の発光材料の励起エネルギーより大きいと好ましい。このようにすることで、正孔輸送材料により発光層の励起状態が消光しなくなり一段と発光効率が高くなる。

#### 発明を実施するための最良の形態

本第一発明の有機EL素子は、陰極と陽極間に、少なくとも燐光性の発光材料とホスト材料からなる発光層を有する有機EL素子において、発光層と陰極との間に、発光層と接合した電子注入層を有し、発光層が電子輸送性で、前記ホスト材料のイオン化ポテンシャルが5.9 eV以下（好ましくは、5.8 eV以下であり）であり、電子注入層中の電子輸送材料のエネルギーギャップが、発光層中のホスト材料のエネルギーギャップより小さい。

本第二発明の有機EL素子は、陰極と陽極間に、少なくとも燐光性の発光材料とホスト材料からなる発光層を有する有機EL素子において、発光層と陰極との間に、発光層と接合した電子注入層を有し、発光層が電子輸送性で、前記ホスト材料のイオン化ポテンシャルが5.9 eV以下であり（好ましくは、5.8 eV以下であり）、電子注入層中の電子輸送材料の三重項エネルギーが、発光層中のホスト材料の三重項エネルギーより小さい。

前記発光層中のホスト材料が電子輸送性であると好ましく、このホスト材料の電子輸送度は $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上であると好ましい。

発光層中のホスト材料については、従来から用いられてきたポリビニルカルバゾールやビスカルバゾールなどのポリカルバゾール化合物は、例外的な場合を除き正孔輸送性でありかつ電子の輸送能力は小さい。このような正孔輸送性材料をホスト材料として用いた際には、発光層の陰極側界面が主たる再結合領域となる。この時、発光層と陰極の間に電子注入層を介在させる共に電子注入層と発光

層を接合させ、電子注入層にエネルギーギャップが発光層を形成するエネルギーギャップより小さい電子輸送材料を含有させると、発光層の陰極側界面を中心として生じた励起状態が電子注入層により失活し、効率の極めて低い素子しか得られない。また、電子注入層を形成する電子輸送材料の三重項エネルギーは発光層を形成するホスト材料の三重項エネルギーより小さい場合でも発光層の陰極側界面を中心として生じた励起状態が電子注入層により失活し、効率の極めて低い素子しか得られない。

一方、本発明では発光層が電子輸送性であるため、電子と正孔が再結合する領域が電子注入層と発光層との界面から離れ、生じた励起状態の失活を免れる。

また、本発明の発光層中のホスト材料は、イオン化ポテンシャルが $5.9\text{ eV}$ 以下のものである。このようにすることにより、正孔輸送材料のイオン化ポテンシャルが $5.3\sim 5.7\text{ eV}$ であることから、エネルギー障壁を $-0.2\sim 0.6\text{ eV}$ とすることができホスト材料へ正孔が注入できるようになる。さらに、ホスト材料間で正孔が輸送されるようになるので、駆動電圧が低くなるような化合物を使用することもできる。

前記発光層中のホスト材料としては、カルバゾリル基もしくはアザカルバゾリル基が含窒素環に連結した化合物、又はカルバゾリル基もしくはアザカルバゾリル基がアリーレン基を介して含窒素環に連結した化合物であると好ましい。

このカルバゾリル基、アザカルバゾリル基、含窒素環及びアリーレン基は、それぞれ置換基を有していてもよく、置換基としては、例えば、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、アミノ基、ニトロ基、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アラルキル基、アリールオキシ基、アルコシキカルボニル基、カルボキシ基等が挙げられる。

また、前記発光層中のホスト材料としてさらに好ましくは、下記一般式(1)又は(2)で表される化合物である。



(式中、Czは、置換もしくは無置換のカルバゾリル基、又は置換もしくは無置換のアザカルバゾリル基である。Aは、アリール置換含窒素環基、ジアリール置換含窒素環基、又はトリアリール置換含窒素環基である。mは1～3の整数である。)

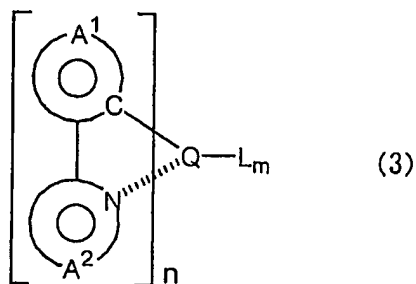


(式中、Czは、置換もしくは無置換のカルバゾリル基、又は置換もしくは無置換のアザカルバゾリル基である。Aは、アリール置換含窒素環基、ジアリール置換含窒素環基、又はトリアリール置換含窒素環基である。nは1～3の整数である。)

前記ホスト材料における好ましい含窒素環としては、ピリジン、キノリン、ピラジン、ピリミジン、キノキサリン、トリアジン、イミダゾール、イミダゾピリジン、ピリダジン、ベンズイミダゾール等が挙げられる。

また、一般式(1)及び(2)においては、Czの部位でイオン化ポテンシャルの値は5.6 eV～5.8 eVであることが判明している。

本発明の有機EL素子において、発光層中に含まれる蛍光性の発光材料としては、素子の外部量子効率をより向上させることができる点で有機金属錯体が好ましく、有機金属錯体の金属原子として、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金、金を含有するものが挙げられる。これらの有機金属錯体は下記一般式(3)で表される有機金属錯体であるのが好ましい。



(式中、 $A^1$  は、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素環基又は芳香族複素環基を表し、好ましくは、フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、アントリル基、チエニル基、ピリジル基、キノリル基、イソキノリル基であり、前記置換基としては、フッ素原子等のハロゲン原子；メチル基、エチル基等の炭素数1～30のアルキル基；ビニル基等のアルケニル基；メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等の炭素数1～30のアルコキシカルボニル基；メトキシ基、エトキシ基等の炭素数1～30のアルコキシ基；フェノキシ基、ベンジルオキシ基などのアリールオキシ基；ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基等のジアルキルアミノ基、アセチル基等のアシル基、トリフルオロメチル基等のハロアルキル基、シアノ基を表す。

$A^2$  は、窒素を複素環を形成する原子として含有する置換もしくは無置換の芳香族複素環基を表し、好ましくは、ピリジル基、ピリミジル基、ピラジン基、トリアジン基、ベンゾチアゾール基、ベンゾオキサゾール基、ベンゾイミダゾール基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリン基、フェナントリジン基であり、前記置換基としては、 $A^1$  と同様のものが挙げられる。

$A^1$  を含む環と  $A^2$  を含む環は一つの縮合環を形成してもよく、このようなものとしては、例えば、7,8-ベンゾキノリン基等が挙げられる。

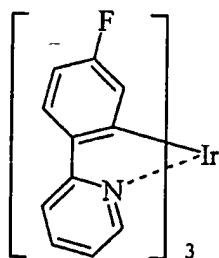
Qは、周期表7～11族から選ばれる金属であり、好ましくは、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金、金を表す。

Lは、2座型の配子を表し、好ましくは、アセチルアセトナート等のβ-ジケト型の配位子又はピロメリット酸から選ばれる。

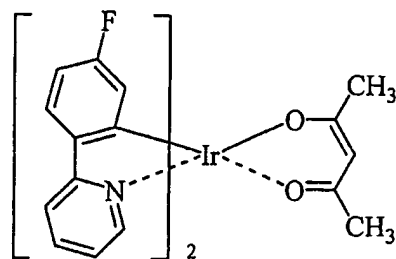
m及びnは整数を表し、Qが二価金属の場合は、 $n=2$ 、 $m=0$ であり、Qが三価金属の場合は、 $n=3$ かつ $m=0$ 、又は $n=2$ かつ $m=1$ である。）

前記一般式(3)で示される有機金属錯体の具体例を以下に示すが、何ら下記の化合物に限定されるものではない。

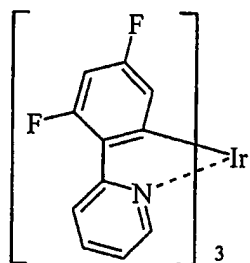
(K-1)



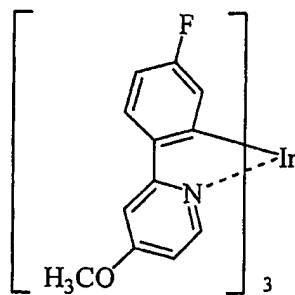
(K-2)



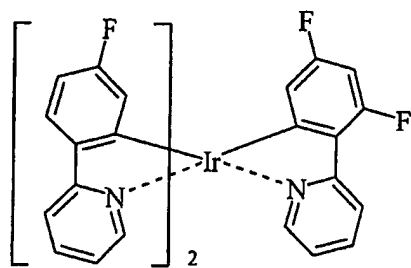
(K-3)



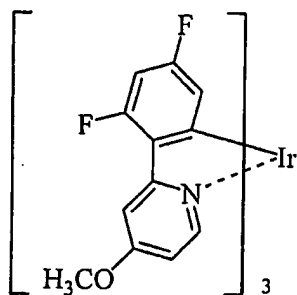
(K-4)



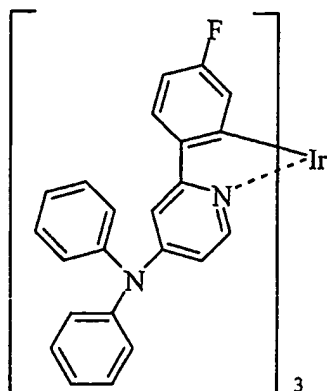
(K-5)



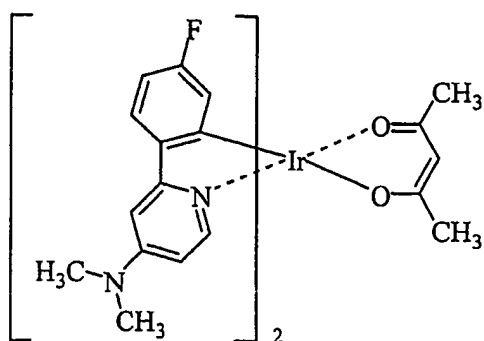
(K-6)



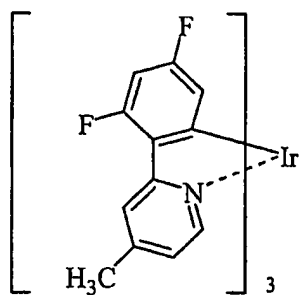
(K-7)



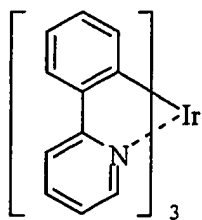
(K-8)



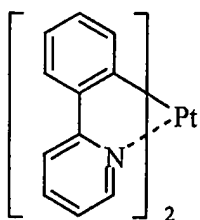
(K-9)



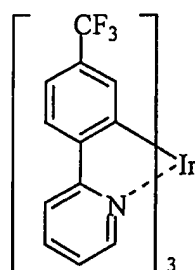
(K-10)



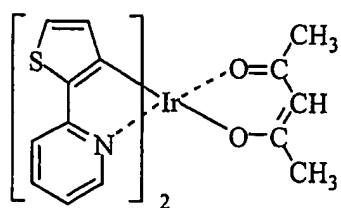
(K-11)



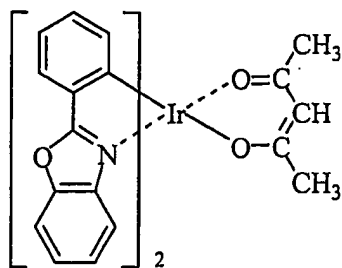
(K-12)



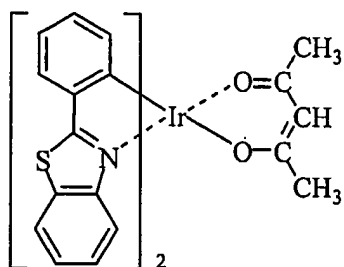
(K-13)



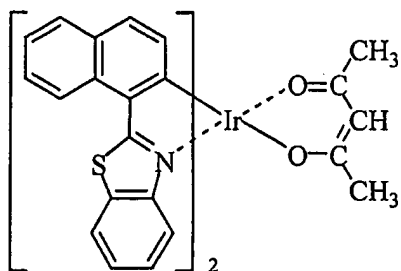
(K-14)



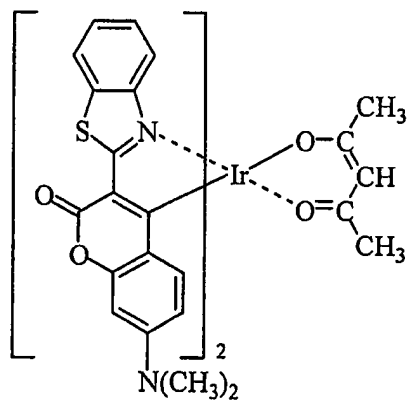
(K-15)



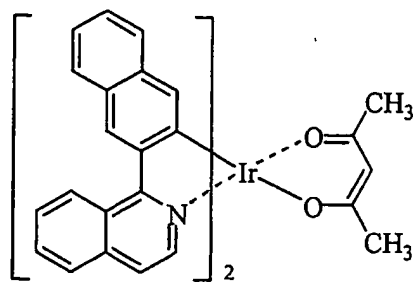
(K-16)



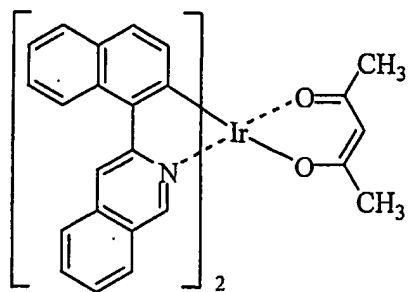
(K-17)



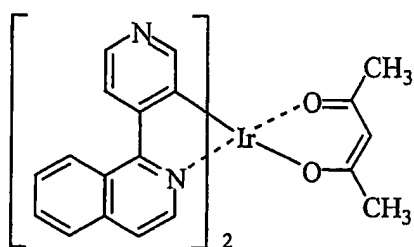
(K-18)



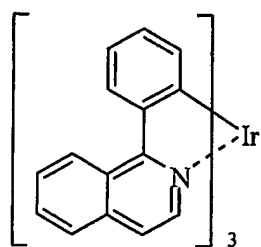
(K-19)



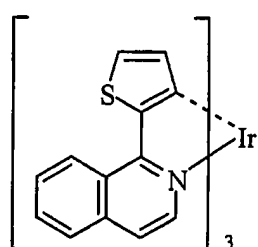
(K-20)



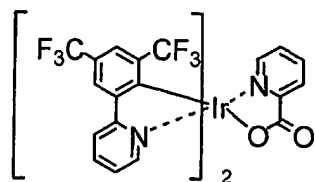
(K-21)



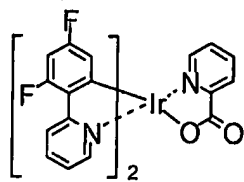
(K-22)



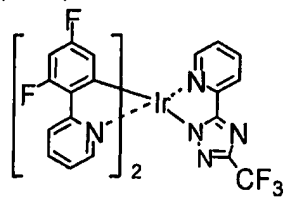
(K-23)



(K-24)



(K-25)





本発明の電子注入層に用いる電子輸送材料は、前述したように、電子輸送材料のエネルギーギャップが発光層中のホスト材料より小さいか、又は電子輸送材料の三重項エネルギーが発光層中のホスト材料より小さくしたことにより、電子注入性が向上している。

電子注入層中の電子輸送材料のエネルギーギャップは、 $2.8\text{ eV}$ 以下であると好ましく、 $2.75\text{ eV}$ 以下であるとさらに好ましい。好ましい電子輸送材料としては、含窒素複素環化合物が挙げられる。これは、窒素原子を有する複素環を有する化合物と定義され、例えば、含窒素錯体や含窒素環化合物が挙げられる。

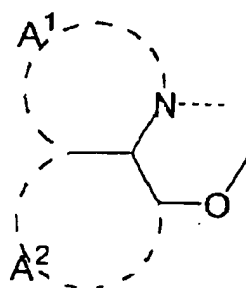
含窒素錯体としては下記(4)～(6)のいずれかで表される化合物が好ましい。

(4)  $M^+ Q$  又は  $M^+ Q'$  (式中、 $M^+$  は一価金属イオン)

(5)  $M^{2+} Q_2$ 、 $M^{2+} Q Q'$  又は  $M^{2+} Q'_2$  (式中、 $M^{2+}$  は二価金属イオン)

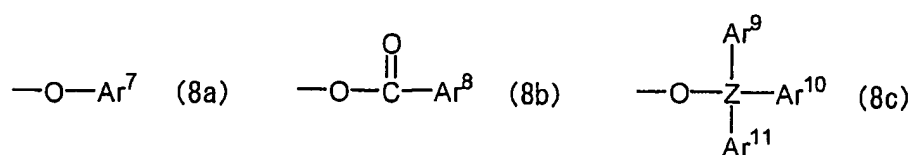
(6)  $M^{3+} Q_3$ 、 $M^{3+} Q_2 Q'$ 、 $M^{3+} Q Q'_2$  又は  $M^{3+} Q'_3$  (式中、 $M^{3+}$  は三価金属イオン)

ここで、 $Q$  及び  $Q'$  は、それぞれ独立に、下記一般式(7)及び(8a)～(8c)で表される配位子である。



(7)

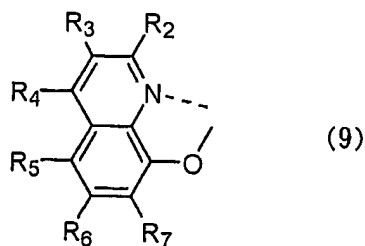
(式中、 $A^1$  及び  $A^2$  は、置換もしくは無置換の芳香族環である)



(式中、ZはSi、Ge又はSnのいずれかの原子を表わし、 $\text{Ar}^7 \sim \text{Ar}^{10}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を表す)

また、Q及びQ'は、それぞれベンゾアゾールであってもよく、例えば、ベンゾイミダゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾオキサゾール誘導体等があげられる。

これらのうち、特に好ましいQ及びQ'は、下記一般式(9)で表されるものである。



(式中、 $R_2 \sim R_7$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換もしくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換のアラルキル基、置換もしくは無置換のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のアルコシキカルボニル基、又はカルボキシ基を表す。 $R_2 \sim R_7$ は、それらのうちの2つで環を形成していてもよい。)

前記R<sub>2</sub>～R<sub>7</sub>の示す各基の具体例としては、以下に示すようなものが挙げられる。

ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。

置換もしくは無置換のアミノ基は $-NX^1X^2$ と表され、X<sup>1</sup>及びX<sup>2</sup>の例としては、それぞれ独立に、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-t-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソ

プロピル基、2, 3-ジニトロ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、4-スチリルフェニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、*p*-ターフェニル-4-イル基、*p*-ターフェニル-3-イル基、*p*-ターフェニル-2-イル基、*m*-ターフェニル-4-イル基、*m*-ターフェニル-3-イル基、*m*-ターフェニル-2-イル基、*o*-トリル基、*m*-トリル基、*p*-トリル基、*p*-*tert*-ブチルフェニル基、*p*-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4''-*tert*-ブチル-*p*-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノ

ノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル

基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-teeブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-teeブチル1-インドリル基、4-teeブチル1-インドリル基、2-teeブチル3-インドリル基、4-teeブチル3-インドリル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のアルキル基の例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、teeブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒ

ドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のアルケニル基の例としては、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1, 3-ブタンジエニル基、1-メチルビニル基、スチリル基、2, 2-ジフェニルビニル基、1, 2-ジフェニルビニル基、1-メチルアリル基、1, 1-ジメチルアリル基、2-メチルアリル基、1-フェニルアリル基、2-フェニルアリル基、3-フェニルアリル基、3, 3-ジフェニルアリル基、1, 2-ジメチルアリル基、1-フェニル-1

ーブテニル基、3-フェニル-1-ブテニル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のシクロアルキル基の例としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のアルコキシ基は、-OYで表される基であり、Yの例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1,2-ジヒドロキシエチル基、1,3-ジヒドロキシイソプロピル基、2,3-ジヒドロキシー-ブチル基、1,2,3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1,2-ジクロロエチル基、1,3-ジクロロイソプロピル基、2,3-ジクロロ-ブチル基、1,2,3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1,2-ジブロモエチル基、1,3-ジブロモイソプロピル基、2,3-ジブromo-ブチル基、1,2,3-トリブromoプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1,2-ジヨードエチル基、1,3-ジヨードイソプロピル基、2,3-ジヨード-ブチル基、1,2,3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1,2-ジアミノエチル基、1,3-ジアミノイソプロピル基、2,3-ジアミノ-ブチル基、1,2,3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1,2-ジシアノエチル基、1,3-ジシアノイソプロピル基、2,3-ジシアノ-ブチル基、1,2,3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、



1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基の例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、*p*-ターフェニル-4-イル基、*p*-ターフェニル-3-イル基、*p*-ターフェニル-2-イル基、*m*-ターフェニル-4-イル基、*m*-ターフェニル-3-イル基、*m*-ターフェニル-2-イル基、*o*-トリル基、*m*-トリル基、*p*-トリル基、*p*-*tert*-ブチルフェニル基、*p*-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4''-*tert*-ブチル-*p*-ターフェニル-4-イル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換の芳香族複素環基の例としては、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基

、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル

ル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-ト-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-ト-ブチル-1-インドリル基、4-ト-ブチル-1-インドリル基、2-ト-ブチル-3-インドリル基、4-ト-ブチル-3-インド

リル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のアラルキル基の例としては、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-7-ブチル基、 $\alpha$ -ナフチルメチル基、1- $\alpha$ -ナフチルエチル基、2- $\alpha$ -ナフチルエチル基、1- $\alpha$ -ナフチルイソプロピル基、2- $\alpha$ -ナフチルイソプロピル基、 $\beta$ -ナフチルメチル基、1- $\beta$ -ナフチルエチル基、2- $\beta$ -ナフチルエチル基、1- $\beta$ -ナフチルイソプロピル基、2- $\beta$ -ナフチルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル)エチル基、p-メチルベンジル基、m-メチルベンジル基、o-メチルベンジル基、p-クロロベンジル基、m-クロロベンジル基、o-クロロベンジル基、p-ブロモベンジル基、m-ブロモベンジル基、o-ブロモベンジル基、p-ヨードベンジル基、m-ヨードベンジル基、o-ヨードベンジル基、p-ヒドロキシベンジル基、m-ヒドロキシベンジル基、o-ヒドロキシベンジル基、p-アミノベンジル基、m-アミノベンジル基、o-アミノベンジル基、p-ニトロベンジル基、m-ニトロベンジル基、o-ニトロベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のアリールオキシ基は、-OZ' と表され、Z' の例としてはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル

基、m-トリル基、p-トリル基、p-tert-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-tert-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-

イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェ

ノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-teeブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-teeブチル1-インドリル基、4-teeブチル1-インドリル基、2-teeブチル3-インドリル基、4-teeブチル3-インドリル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のアルコキシカルボニル基は-COOYと表され、Yの例としてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、teeブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシteeブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロteeブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1-プロモエチル基、2-プロモエチル基、2-プロモイソブチル基、1, 2-ジプロモエチル基、1, 3-ジプロモイソプロピル基、2, 3-ジプロモteeブチル基、1, 2, 3-トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨー

ドエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

また、環を形成する場合の2価基の例としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン-2, 2'-ジイル基、ジフェニルエタン-3, 3'-ジイル基、ジフェニルプロパン-4, 4'-ジイル基等が挙げられる。

前記各置換基としては、例えば、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、アミノ基、ニトロ基、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アラルキル基、アリールオキシ基、アルコシカルボニル基、又はカルボキシル基等が挙げられ、具体例としては前記と同様のものが挙げられる。

以上のうち、特に好ましい電子輸送材料の含窒素錯体としては、単一の種類の含窒素環誘導体が配位した金属錯体であり、前記含窒素環が、キノリン、フェニルピリジン、ベンゾキノリン又はフェナントロリンであると好ましい。また、前記金属錯体が、キノリノールの金属錯体又はその誘導体であると好ましい。具体的には8-キノリノール誘導体を配位子とする金属錯体、例えばトリス(8-キノリノール) Al 錯体、トリス(5, 7-ジクロロ-8-キノリノール) Al 錯



体、トリス（５，７－ジブロモ－８－キノリノール）Ａｌ錯体、トリス（２－メチル－８－キノリノール）Ａｌ錯体、トリス（５－メチル－８－キノリノール）Ａｌ錯体、トリス（８－キノリノール）Ｚｎ錯体、トリス（８－キノリノール）Ｉｎ錯体、トリス（８－キノリノール）Ｍｇ錯体、トリス（８－キノリノール）Ｃｕ錯体、トリス（８－キノリノール）Ｃａ錯体、トリス（８－キノリノール）Ｓｎ錯体、トリス（８－キノリノール）Ｇａ錯体、トリス（８－キノリノール）Ｐｂ錯体等の１種単独または２種以上の組み合わせが挙げられる。

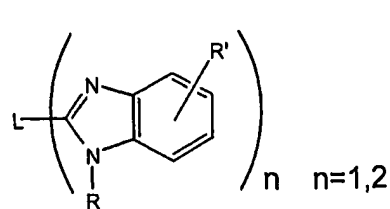
これらの金属錯体は、エネルギーギャップが小さいので陰極からの電子注入性に優れ、電子輸送に対する耐久性も高く、長寿命の素子を与えることができる。

また、好ましい電子輸送材料の含窒素環化合物としては、含窒素環としてピリジン、キノリン、ピラジン、ピリミジン、キノキサリン、トリアジン、イミダゾール、イミダゾピリジン等を有する化合物が挙げられ、特にエネルギーギャップを小さくできることから含窒素環と縮合芳香族環が連結した化合物、又は含窒素環がアリーレン基を介して縮合芳香族環と連結した化合物が好ましい。この含窒素環、縮合芳香族環及びアリーレン基は、それぞれ置換基を有していてもよく、置換基としては、例えば、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、アミノ基、ニトロ基、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アラルキル基、アリーールオキシ基、アルコシキカルボニル基、カルボキシ基等が挙げられる。

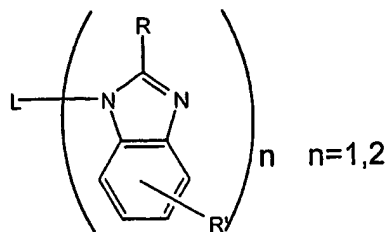
また、好ましい前記縮合芳香族環としては、ナフタレン、アントラセン、ピレン、フェナントレン、フルオランテン、クリセン、ペリレン、ナフタセン又はベンタセン等が挙げられる。

さらに好ましい電子輸送材料の含窒素環化合物としては、含窒素環が、イミダゾールや、これを縮環させたイミダゾピリジン、ベンゾイミダゾール等の６員環と５員環の縮合環であって、１～４個の窒素原子を有するものであり、例えば、ベンゾイミダゾール構造を有するものとして、例えば下記一般式（Ａ）～（Ｂ）

で表されるものが挙げられる。



(A)



(B)

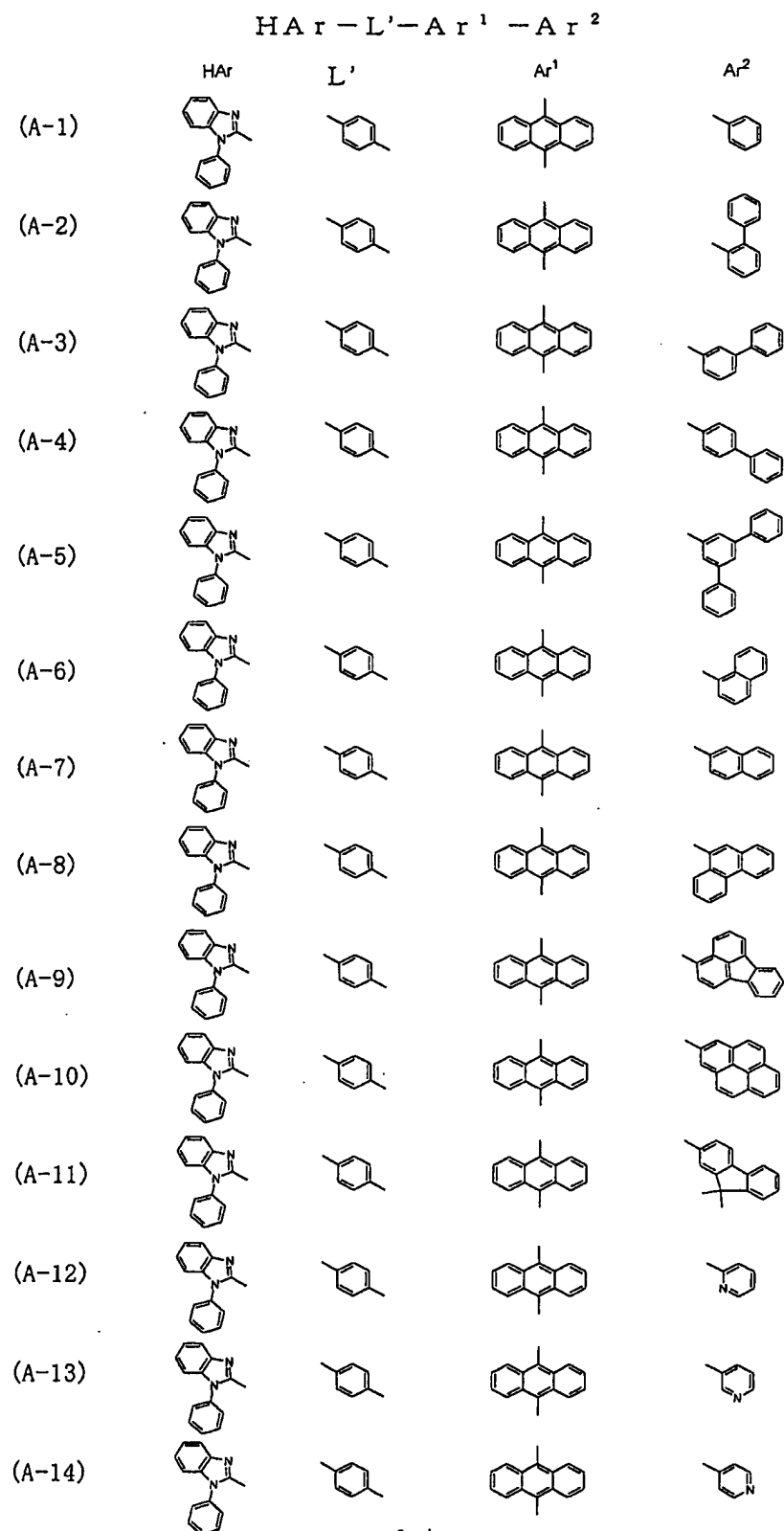
一般式 (A) 及び (B) 中、L は一価又は二価の連結基を表し、例えば、炭素、ケイ素、窒素、ホウ素、酸素、硫黄、金属（例えば、バリウム、ベリリウム）、芳香族炭化水素環、芳香族複素環等が挙げられ、これらのうち炭素原子、窒素原子、ケイ素原子、ホウ素原子、酸素原子、硫黄原子、芳香族炭化水素基、芳香族複素基が好ましく、炭素原子、ケイ素原子、芳香族炭化水素基、芳香族複素基がさらに好ましい。

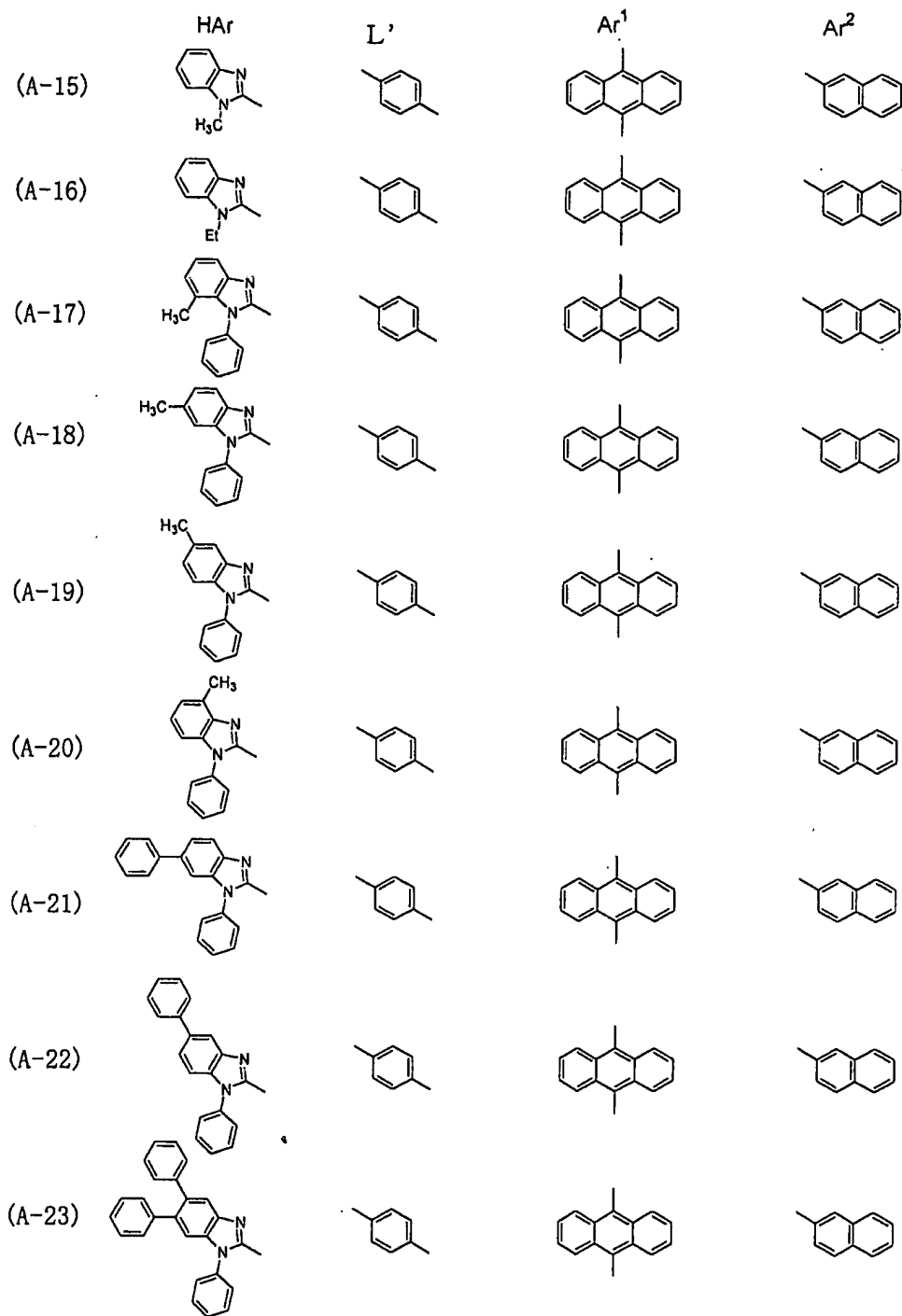
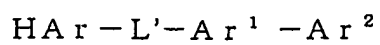
L の芳香族炭化水素基及び芳香族複素基は置換基を有していてもよく、置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、アミノ基、アルコキシ基、アリーールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリーールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリーールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリーールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリーール基、アルコキシ基、アリーールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリーール基、アルコキシ基、アリーールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリーール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

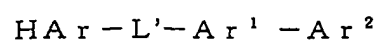
また、一般式 (A) 及び (B) において、L が一価の場合、L は  $-L' - Ar^1 - Ar^2$  で表され、 $L'$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$  としては、縮合芳香族環であるアン

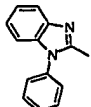

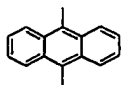
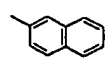
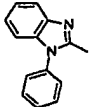

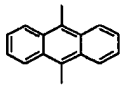
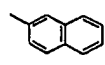
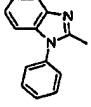

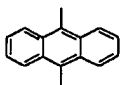
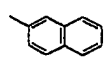
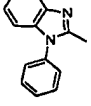

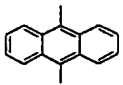
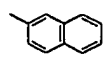
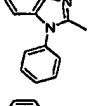

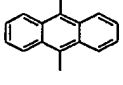
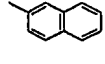
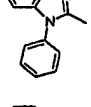

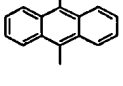
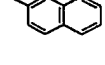
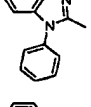
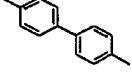
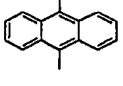
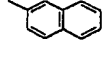
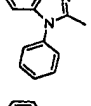
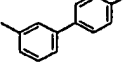
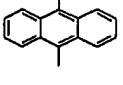
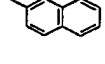
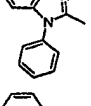
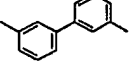
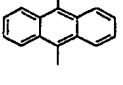
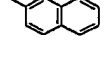
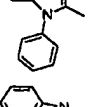
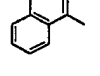
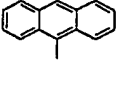
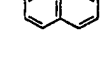
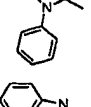
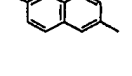
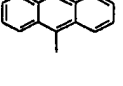
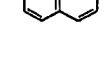
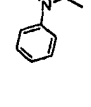
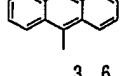
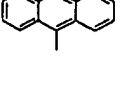
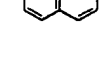
トラセン、ナフタレン、クリセン、フェナントレン、フルオランテン、ピレン、ペリレンや、芳香族ヘテロ環であるピリジン、ピリミジン、トリアジン、さらに縮環していない芳香族環として、ベンゼン、ビフェニル、ターフェニル等の残基が好ましく挙げられる。これらの残基は置換されていてもよく、L' は単結合を表してもよい。Ar<sup>1</sup> として特に好ましくは、アントラセン残基、ナフタレン残基、クリセン残基であり、Ar<sup>2</sup> として特に好ましくは、ナフタレン残基、ビフェニル残基、ベンゼン残基である。

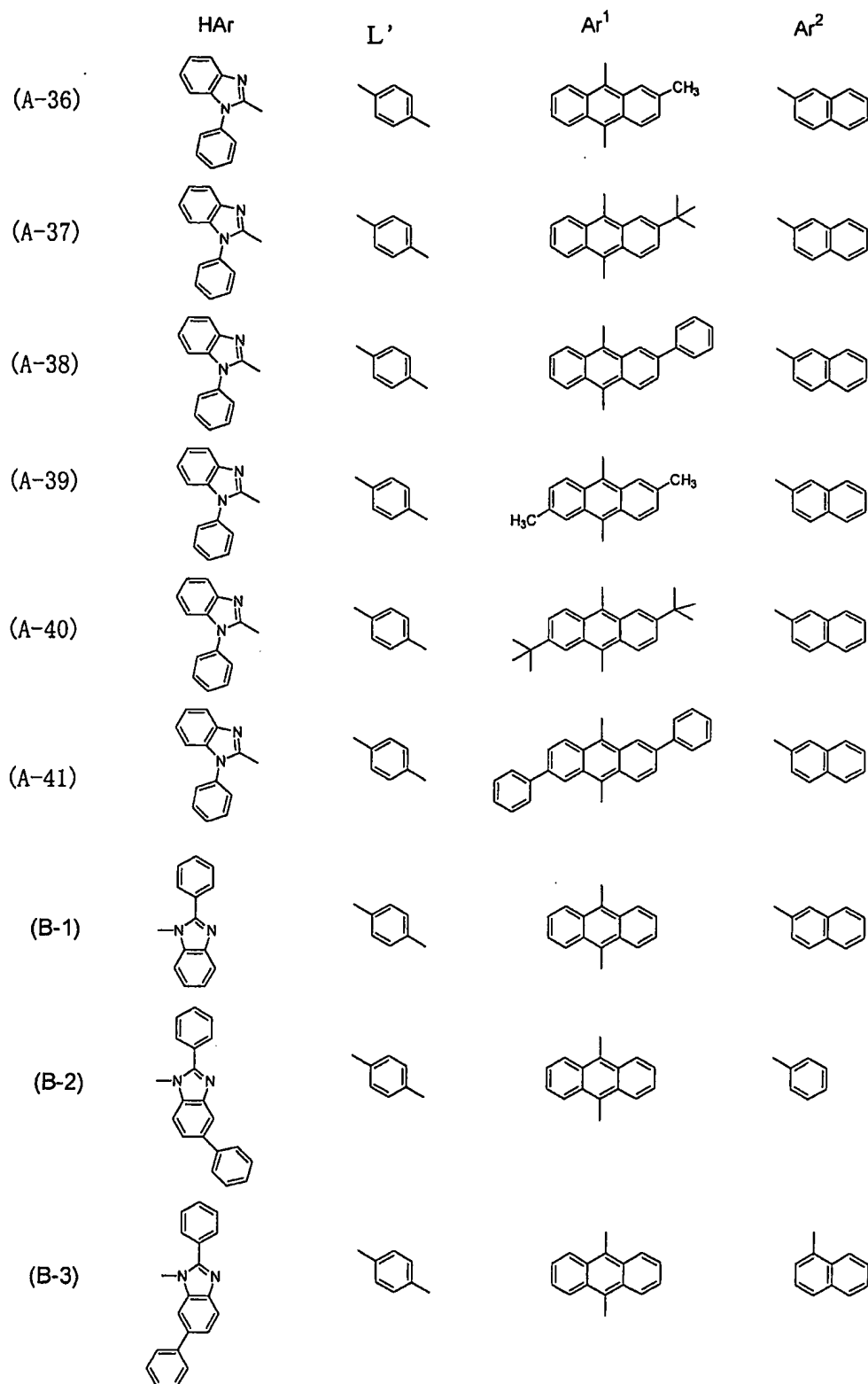
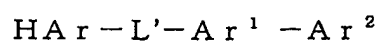
一般式 (A) 及び (B) で表される化合物の具体例としては、以下の例示化合物等が挙げられるがこれら例示化合物に限定されるものではない。なお、下記例示において、一般式 (A) 及び (B) における ( ) 内の含窒素環残基の部分は HAr と記載している。







	HAr	L'	Ar <sup>1</sup>	Ar <sup>2</sup>
(A-24)				
(A-25)				
(A-26)				
(A-27)				
(A-28)				
(A-29)				
(A-30)				
(A-31)				
(A-32)				
(A-33)				
(A-34)				
(A-35)				



Lが二価の場合、一般式(A)及び(B)は $HAr-L'-Ar'-L'-HAr$ で表されるものが好ましい。L'及びAr'の例は及び好ましい例は前記と同様であり、置換基を有していてもよく、L'は単結合でもよい。

R及びR'は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基又は複素環基を表す。

R及びR'の脂肪族炭化水素基は、直鎖、分岐又は環状のアルキル基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、特に好ましくは炭素数1～8のアルキル基であり、例えば、メチル、エチル、i s o -プロピル、t e r t -ブチル、n -オクチル、n -デシル、n -ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。）、アルケニル基（好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～12、特に好ましくは炭素数2～8のアルケニル基であり、例えば、ビニル、アリル、2 -ブテニル、3 -ペンテニル等が挙げられる。）、アルキニル基（好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～12、特に好ましくは炭素数2～8のアルキニル基であり、例えば、プロパルギル、3 -ペンチニル等が挙げられる。）であり、アルキル基であると好ましい。

R及びR'の芳香族炭化水素基は、単環又は縮合環であり、好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、さらに好ましくは炭素数6～12の芳香族炭化水素基であり、例えば、フェニル、2 -メチルフェニル、3 -メチルフェニル、4 -メチルフェニル、2 -メトキシフェニル、3 -トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニル、1 -ナフチル、2 -ナフチル等が挙げられる。

R及びR'の複素環基は、単環又は縮合環であり、好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、さらに好ましくは炭素数2～10の複素環基であり、好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳香族ヘテロ環基である。この複素環基の例としては、例えば、ピロリ



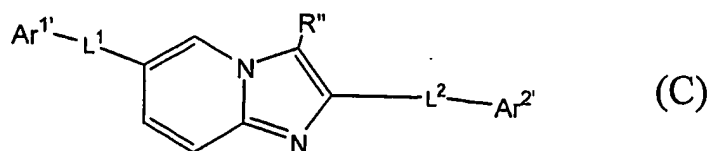
ジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェン、セレノフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、カルバゾール、アゼピン等が挙げられ、好ましくは、フラン、チオフェン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、キノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリンであり、さらに好ましくはキノリンである。

R及びR'で表される脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基及び複素環基は置換基を有していてもよく、置換基としては前記Lで表される基の置換基として挙げたものと同様であり、また好ましい置換基も同様である。

R及びR'として好ましくは、脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基又は複素環基であり、より好ましくは脂肪族炭化水素基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、さらに好ましくは炭素数6～12のもの）又は芳香族炭化水素基であり、さらに好ましくは脂肪族炭化水素基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、さらに好ましくは炭素数2～10のもの）である。

nは、1～2の整数である。

また、電子輸送材料の含窒素環化合物におけるイミダゾピリジン構造を有するものとして、例えば下記一般式(C)で表されるものが挙げられる。



一般式 (C) において、 $Ar^1$  は、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ～ 60 の（好ましくは核炭素数 6 ～ 40）アリール基、又は置換もしくは無置換の核炭素数 3 ～ 60（好ましくは核炭素数 3 ～ 40）のヘテロアリール基である。

$Ar^1$  の置換もしくは無置換のアリール基の例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-クリセニル基、2-クリセニル基、6-クリセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-ターブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4''-ターブチル-p-ターフェニル-4-イル基、フルオランテニル基、フルオレニル基、スピロビフルオレンからなる 1 価の基、パーフルオロフェニル基、パーフルオロナフチル基、パーフルオロアントリル基、パーフルオロビフェニルイル基、9-フェニルアントラセンからなる 1 価の基、9-(1'-ナフチル)アントラセンからなる 1 価の基、9-(2'-ナフチル)アントラセンからなる 1 価の基、6-フェニルクリセンからなる 1 価の基、9-[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]アントラセンからなる 1 価

の基等が挙げられ、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、ターフェニル基、9-(10-フェニル)アントリル基、9-[10-(1'-ナフチル)]アントリル基、9-[10-(2'-ナフチル)]アントリル基等が好ましい。

Ar<sup>1'</sup>の置換もしくは無置換のヘテロアリール基の例としては、ピローリル基、フリル基、チエニル基、シローリル基、ピリジル基、キノリル基、イソキノリル基、ベンゾフリル基、イミダゾリル基、ピリミジル基、カルバゾリル基、セレンフェニル基、オキサジアゾリル基、トリアゾーリル基等が挙げられ、ピリジル基、キノリル基、イソキノリル基が好ましい。

一般式(C)において、Ar<sup>2'</sup>は、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数6~60(好ましくは核炭素数6~40)のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数3~60(好ましくは核炭素数3~40)のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1~20(好ましくは炭素数1~6)のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数1~20(好ましくは炭素数1~6)のアルコキシ基である。

Ar<sup>2'</sup>の置換もしくは無置換のアリール基の例としては、前記Ar<sup>1'</sup>と同様のものが挙げられる。

Ar<sup>2'</sup>の置換もしくは無置換のヘテロアリール基の例としては、前記Ar<sup>1'</sup>と同様のものが挙げられる。

Ar<sup>2'</sup>の置換もしくは無置換のアルキル基の例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1,2-ジヒドロキシエチル基、1,3-ジヒドロキシイソプロピル基、2,3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1,2-ジクロロエチル基、1,3-ジク

ロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1-プロモエチル基、2-プロモエチル基、2-プロモイソブチル基、1, 2-ジプロモエチル基、1, 3-ジプロモイソプロピル基、2, 3-ジプロモ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基、1-アダマンチル基、2-アダマンチル基、1-ノルボルニル基、2-ノルボルニル基等が挙げられ、メチル基、エチル基、*tert*-ブチル基が好ましい。

Ar<sup>2'</sup>の置換もしくは無置換のアルコキシ基は-OYで表される基であり、Yの例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*tert*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシー-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基

、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられ、メチル基、エチル基、tert-ブチル基が好ましい。

ただし、一般式(C)において、 $Ar^1$ 及び $Ar^2$ のいずれか一方は、置換もしくは無置換の核炭素数10～60の縮合環基、又は置換もしくは無置換の核炭素数3～60のモノヘテロ縮合環基である。

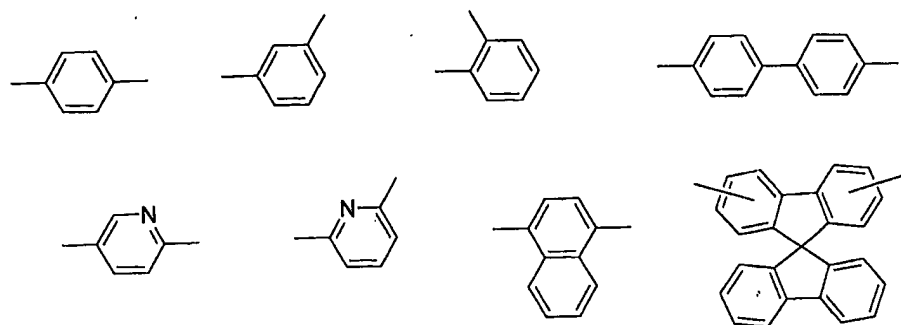
一般式(C)の $L^1$ 及び $L^2$ は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の核炭素数6～60（好ましくは核炭素数6～40）のアリーレン基、置換もしくは無置換の核炭素数3～60（好ましくは核炭素数3～40）のヘテロアリーレン基、又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基である。

$L^1$ 及び $L^2$ の置換もしくは無置換のアリーレン基の例としては、前記 $Ar^1$

と同様のアリール基からさらに水素原子を除き 2 価の基としたものが挙げられる。

$L^1$  及び  $L^2$  の置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基の例としては、前記  $Ar''$  と同様のヘテロアリーール基からさらに水素原子を除き 2 価の基としたものが挙げられる。

また、一般式 (C) において、 $L^1$  及び／又は  $L^2$  が、

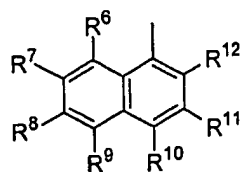


からなる群から選ばれる基であると好ましい。

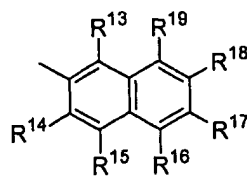
さらに、一般式 (C) において、前記  $Ar''$  が、下記一般式 (a) ~ (j) で表される基であると好ましい。



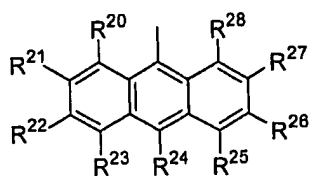
(a)



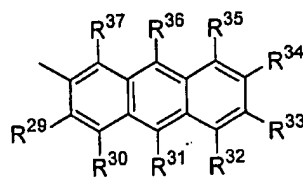
(b)



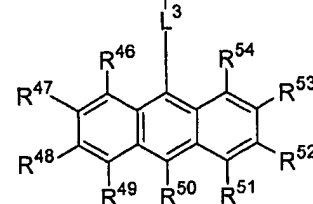
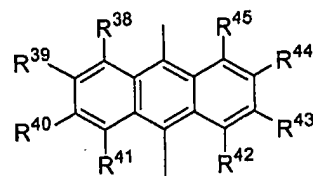
(c)



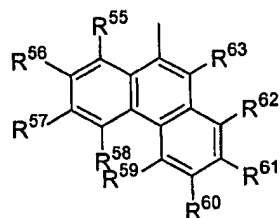
(d)



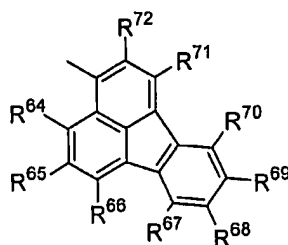
(e)



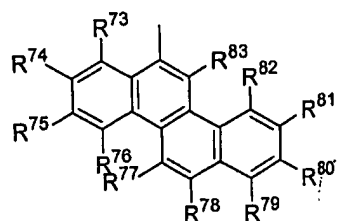
(f)



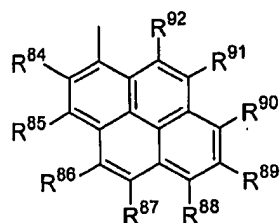
(g)



(h)



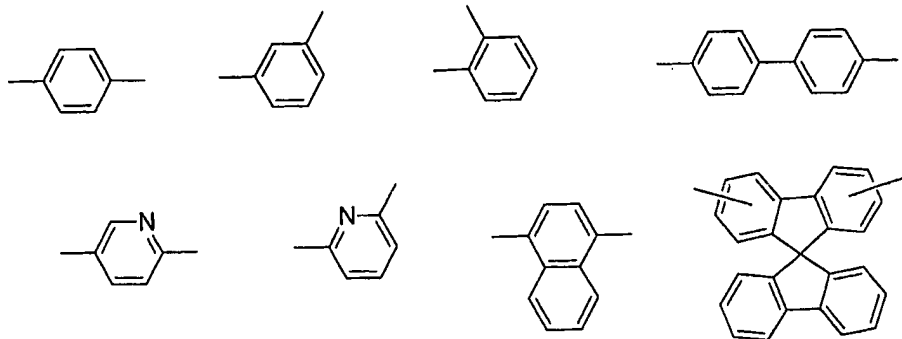
(i)



(j)

(式中、式中、 $R^1 \sim R^{92}$ は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数6～40のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数12～80のジアリールアミノ基、置換もしくは無置換の核炭素数6～40のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素

数 3～40 のヘテロアリール基、又は置換もしくは無置換の核炭素数 18～120 のジアリールアミノアリール基、 $L^3$  が、単結合及び



からなる群から選ばれる基である。)

一般式 (C) の  $R''$  は、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数 6～60 のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数 3～60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルコキシ基である。

$R''$  の置換もしくは無置換のアリール基の例としては、前記  $Ar^1$  と同様のものが挙げられる。

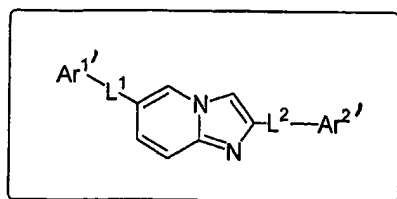
$R''$  の置換もしくは無置換のヘテロアリール基の例としては、前記  $Ar^1$  と同様のものが挙げられる。

$R''$  の置換もしくは無置換のアルキル基の例としては、前記  $Ar^2$  と同様のものが挙げられる。








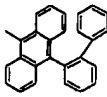



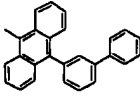



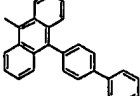



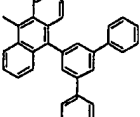



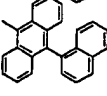



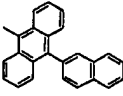



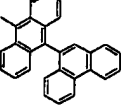



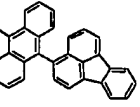



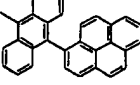



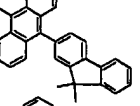



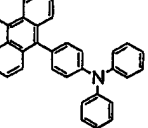
$R''$  の置換もしくは無置換のアルコキシ基の例としては、前記  $Ar^2$  と同様のものが挙げられる。




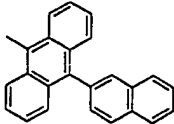



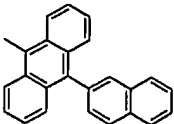
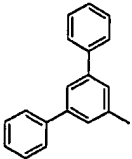


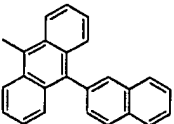



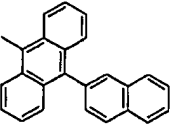
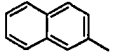


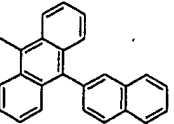
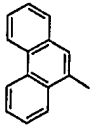


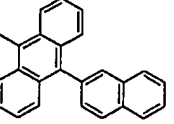
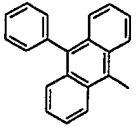


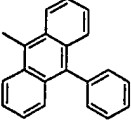
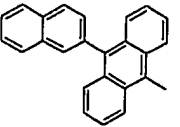


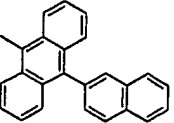
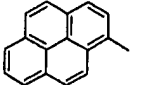


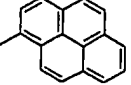
一般式 (C) で表される化合物の具体例としては、以下の例示化合物等が挙げられるがこれら例示化合物に限定されるものではない。

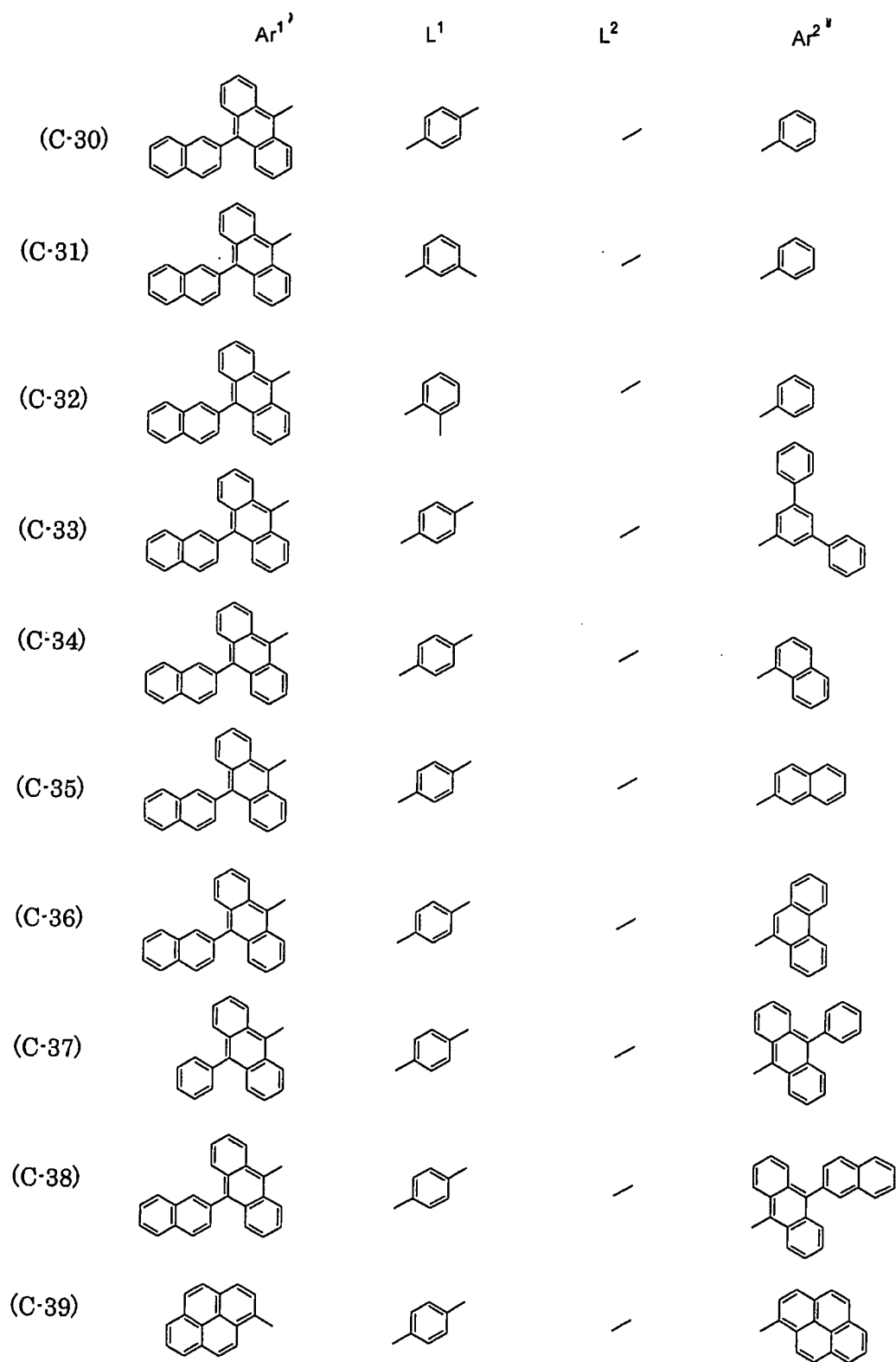




	Ar <sup>1'</sup>	L <sup>1</sup>	L <sup>2</sup>	Ar <sup>2'</sup>
(C-1)				
(C-2)				
(C-3)				
(C-4)				
(C-5)				
(C-6)				
(C-7)				
(C-8)				

	Ar <sup>1</sup>	L <sup>1</sup>	L <sup>2</sup>	Ar <sup>2</sup>
(C-9)				
(C-10)				
(C-11)				
(C-12)				
(C-13)				
(C-14)				
(C-15)				
(C-16)				
(C-17)				
(C-18)				
(C-19)				
(C-20)				

	Ar <sup>1</sup>	L <sup>1</sup>	L <sup>2</sup>	Ar <sup>2</sup>
(C-21)				
(C-22)				
(C-23)				
(C-24)				
(C-25)				
(C-26)				
(C-27)				
(C-28)				
(C-29)				



また、一般式 (C) で表される含窒素環化合物は置換基を有していてもよく、置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、アミノ基、アルコキシ基、アリーールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリーールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリーールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリーールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリーール基、アルコキシ基、アリーールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリーール基、アルコキシ基、アリーールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリーール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

これらの含窒素環化合物は、エネルギーギャップが小さいので陰極からの電子注入性に優れ、電子輸送に対する耐久性も高く、長寿命の素子を与えることができる。

本発明においては、還元性ドーパントが、前記電子注入層に添加されているか、又は陰極と該陰極と接合する層との界面領域に添加されていると好ましく、還元性ドーパントの仕事関数が、 $2.9\text{ eV}$ 以下であると好ましい。この電子注入効率を上昇させる化合物と定義され。該還元性ドーパントは、含有される電子注入層又は界面領域の少なくとも一部を還元しアニオン化する。

界面領域への還元性ドーパントの添加形態としては、層状又は島状に形成すると好ましい。

この還元性ドーパントとしては、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、希土類金属化合物から選ばれた少なくとも一種類を用いると好ましい。前記アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属化合物、及び希土類金属化合物としては、それぞれの酸化物やハロゲン化合物が挙げられる

。

前記アルカリ金属としては、Na（仕事関数：2.36 eV）、K（仕事関数：2.28 eV）、Rb（仕事関数：2.16 eV）、Cs（仕事関数：1.95 eV）等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。これらのうち好ましくはK、Rb、Cs、さらに好ましくはRb又はCsであり、最も好ましくはCsである。

前記アルカリ土類金属としては、Ca（仕事関数：2.9 eV）、Sr（仕事関数：2.0～2.5 eV）、Ba（仕事関数：2.52 eV）等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

前記、希土類金属としては、Sc、Y、Ce、Tb、Yb等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

以上の金属のうち好ましい金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が可能である。

前記アルカリ金属化合物としては、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、 $\text{Cs}_2\text{O}$ 、 $\text{K}_2\text{O}$ 等のアルカリ酸化物、 $\text{LiF}$ 、 $\text{NaF}$ 、 $\text{CsF}$ 、 $\text{KF}$ 等のアルカリハロゲン化物等が挙げられ、 $\text{LiF}$ 、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、 $\text{NaF}$ のアルカリ酸化物又はアルカリフッ化物が好ましい。

。

前記アルカリ土類金属化合物としては、 $\text{BaO}$ 、 $\text{SrO}$ 、 $\text{CaO}$ 及びこれらを混合した $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{O}$ （ $0 < x < 1$ ）や、 $\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x}\text{O}$ （ $0 < x < 1$ ）等が挙げられ、 $\text{BaO}$ 、 $\text{SrO}$ 、 $\text{CaO}$ が好ましい。

前記希土類金属化合物としては、 $\text{YbF}_3$ 、 $\text{ScF}_3$ 、 $\text{ScO}_3$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Ce}_2\text{O}_3$ 、 $\text{GdF}_3$ 、 $\text{TbF}_3$ 等が挙げられ、 $\text{YbF}_3$ 、 $\text{ScF}_3$ 、 $\text{TbF}_3$ が好ましい。

前記アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、希土類金属錯体としては、それぞれ金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希土類

金属イオンの少なくとも一つ含有するものであれば特に限定はない。また、配位子にはキノリノール、ベンゾキノリノール、アクリジノール、フェナントリジノール、ヒドロキシフェニルオキサゾール、ヒドロキシフェニルチアゾール、ヒドロキシジアリールオキサジアゾール、ヒドロキシジアリールチアジアゾール、ヒドロキシフェニルピリジン、ヒドロキシフェニルベンゾイミダゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ヒドロキシフルボラン、ビピリジル、フェナントロリン、フタロシアニン、ポルフィリン、シクロペンタジエン、 $\beta$ -ジケトン類、アゾメチン類、及びそれらの誘導体などが好ましいが、これらに限定されるものではない。

形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により還元性ドーパントを蒸着しながら、界面領域を形成する発光材料や電子注入材料である有機物を同時に蒸着させ、有機物中に還元ドーパントを分散する方法が好ましい。分散濃度としてはモル比で有機物：還元性ドーパント＝100：1～1：100、好ましくは5：1～1：5である。

還元性ドーパントを層状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を層状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み0.1～15 nmで形成する。

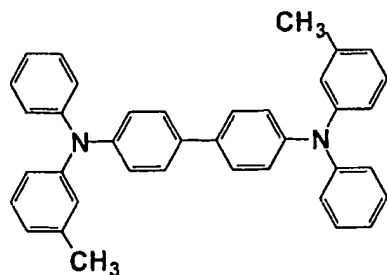
還元性ドーパントを島状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは島の厚み0.05～1 nmで形成する。

また、本発明の有機EL素子の電子注入層における、主成分と還元性ドーパントの割合としては、モル比で主成分：還元性ドーパント＝5：1～1：5であると好ましく、2：1～1：2であるとさらに好ましい。

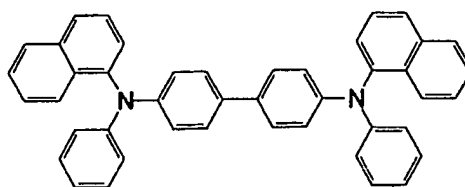
本発明の有機EL素子において、陰極と陽極間に、燐光性の発光材料が添加されている正孔輸送層を有すると好ましい。この正孔輸送層に用いる正孔輸送材料は、その三重項エネルギーが、前記発光層中の燐光性の発光材料の励起エネルギー

一より大きいと好ましい。

また、従来用いられてきた下記TPDやNPD



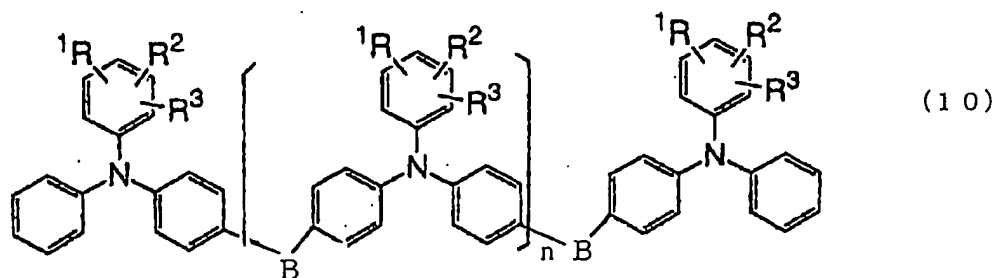
TPD



NPD

は、三重項エネルギーがそれぞれ2.46 eV, 2.51 eVであり、これに対し、本発明で用いる発光層中の燐光性の発光材料は、例えば前記した(K-10)の三重項エネルギーは2.55 eVであるので、発光層の励起状態を失活してしまう。すなわち、正孔輸送材料の三重項エネルギーが2.55 eVより大きいものが失活程度が小さく発光効率が高くなる。

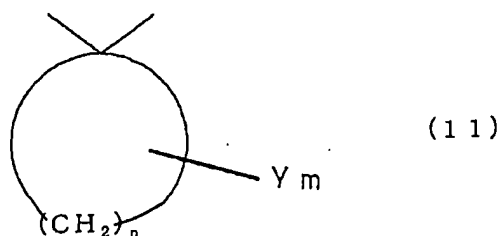
本発明で用いる三重項エネルギーが2.55 eVより大きい正孔輸送材料の具体例としては、以下に示す一般式(10)、(12)、(14)~(17)及び(19)のものが好ましく、それらは縮合芳香族環を有しないことが好ましい。



[式中、nは0~3の整数であり、R<sup>1</sup>~R<sup>3</sup>は、それぞれ置換もしくは無置換の炭素数1~30のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~30のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数6~30のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数6~30のアリールアルキル基である。Bは、シクロヘキシレン、アダマンチルなどの脂肪族環残基であるが、好ましくは下記一般式(11)で



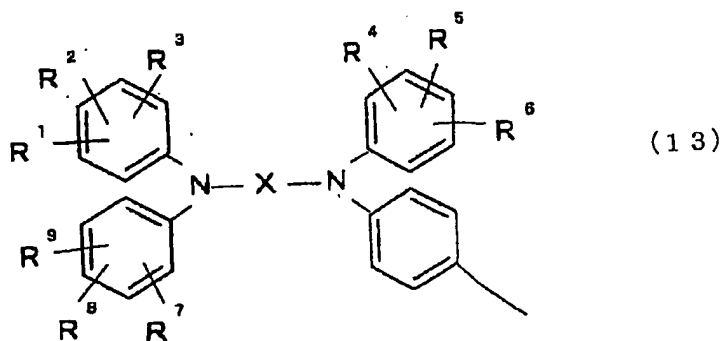
示される脂肪族環残基を表す。



(式中、Yは、置換もしくは未置換のアルキル基又は置換もしくは無置換のアリール基である。nは2～7の整数、mは0～2の整数を表す。)]

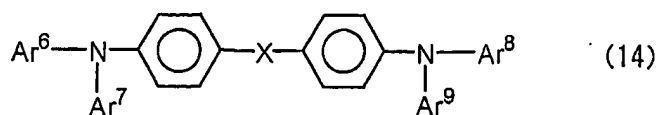


[式中、Aは下記一般式(13)で表されるジアミン誘導体残基、Bはアダマンチル脂肪族環状基であり、好ましくは前記一般式(11)で示される脂肪族環残基をそれぞれ表す。]

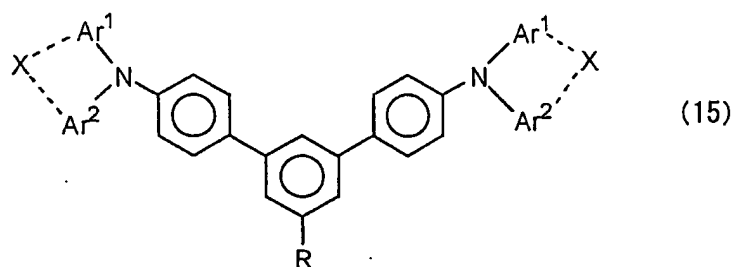


[ (式中、R<sup>1</sup>～R<sup>9</sup>は、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換のチオアルコキシ基、シアノ基、アミノ基、モノ又はジ置換アミノ基、水酸基、メルカプト基、置換もしくは無置換のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のアリールチオ基、置換もしくは無置換の芳香族環基、置換もしくは無置換の複素環基を表し(ただし、R<sup>1</sup>～R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>～R<sup>6</sup>及びR<sup>7</sup>～R<sup>9</sup>のうち少なくとも1個は水素原子ではない。また、隣接した置換基同士で置換もしくは無置換の脂肪族式環、置換もしくは無置換の炭素環式芳香族環、置換もしくは無置換の複素環式芳香族環

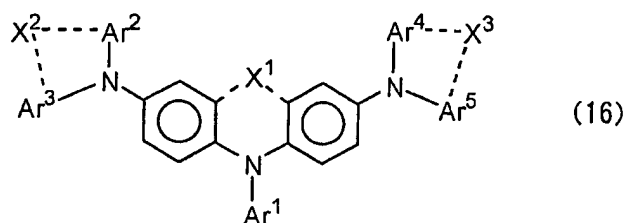
基、置換もしくは無置換の複素環を形成しても良い。) 、Xはフェニル、ビフェニル、又はターフェニルである。]



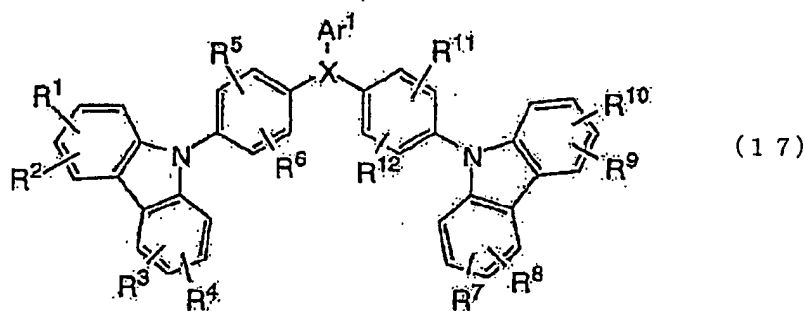
(Ar<sup>6</sup> ~ Ar<sup>9</sup> は、それぞれ無置換又はアルキル基、アルコキシ基で置換された炭素数 6 ~ 18 の芳香族基を表し、互いに同一でも異なってもよいが、Ar<sup>6</sup> ~ Ar<sup>9</sup> のうち少なくとも一つはビフェニル又はターフェニル基であることが好ましく、Xは単結合、フェニレン、ビフェニル、N-アルキル又はN-アリールカルバゾールからなる 2 価の基である。)



(式中、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>2</sup> は置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 18 のアリール基であり、Rは、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基または核炭素数 6 ~ 18 のアリール基である。Xは単結合、アルキレン、-O-又は-S-で表される連結基を示し、Xはあってもなくてもよい。) で表されるジアミン化合物。

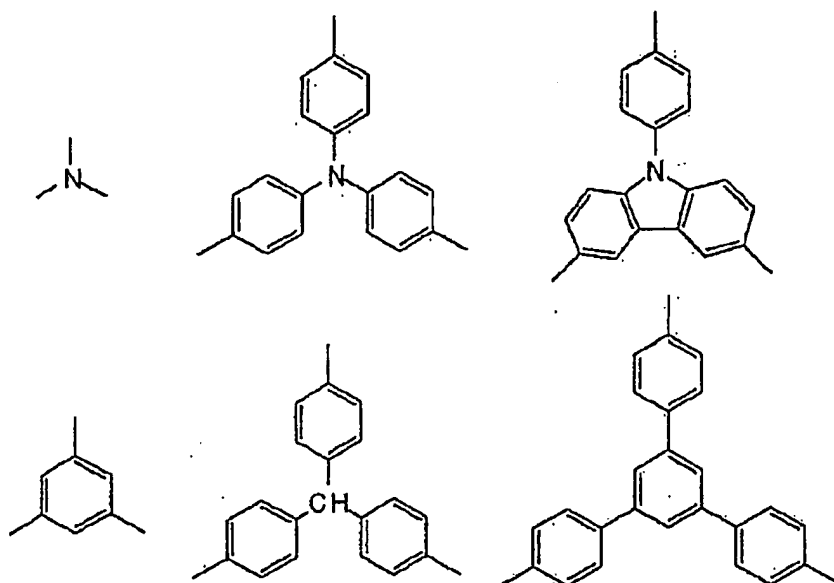


(式中、 $Ar^1$  は置換もしくは無置換の核炭素数 6 ～ 18 のアリール基、 $Ar^2 \sim Ar^5$  は、それぞれ置換もしくは無置換の核炭素数 6 ～ 18 のアリーレン基を示し、 $X^1$  は、単結合、 $-O-$ 、 $-S-$ 、アルキレンである連結基を示し、これらの連結基はあってもなくてもよく、 $X^2$  及び  $X^3$  は、それぞれ単結合、 $-O-$ 、 $-S-$ 、アルキレン基を表し、それらは同一でも異なってもよい。) で表されるトリアミン化合物。

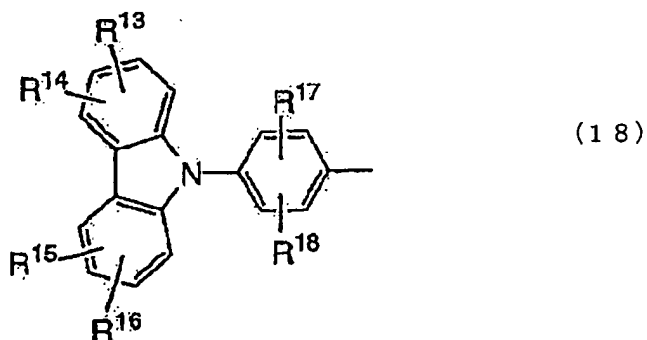


(式中、 $R^1 \sim R^{12}$  は、それぞれ、水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アラ  
ルキル基、アルケニル基、シアノ基、アミノ基、アシル基、アルコキシカルボニ  
ル基、カルボキシシル基、アルコキシ基、アルキルアミノ基、アラルキルアミノ基  
、ハロアルキル基、水酸基、アリーールオキシ基、置換もしくは無置換の芳香族炭  
化水素環基又は芳香族複素環基を表し、 $R^1$  と  $R^2$ 、 $R^3$  と  $R^4$ 、 $R^5$  と  $R^6$ 、  
 $R^7$  と  $R^8$ 、 $R^9$  と  $R^{10}$ 、 $R^{11}$  と  $R^{12}$  は、それぞれ隣接する置換基同士で環を形  
成してもよい。

X は以下に示す 3 価の連結基を表し、

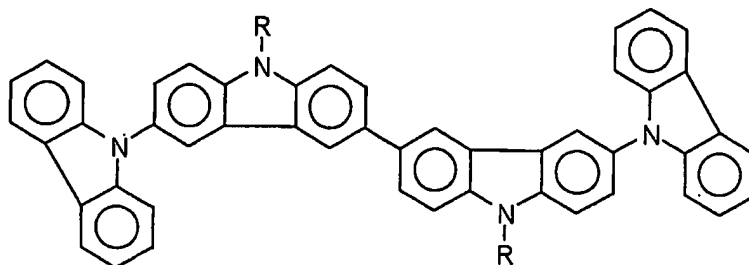


Ar'は、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、又は、以下に示す一般式(18)で表される基である。



(式中、 $R^{13} \sim R^{18}$ は、それぞれ、水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アラ  
ルキル基、アルケニル基、シアノ基、置換もしくは無置換のアミノ基、アシル基  
、アルコキシカルボニル基、カルボキシ基、アルコキシ基、アルキルアミノ基  
、アラルキルアミノ基、ハロアルキル基、水酸基、アリーロキシ基、置換もし  
くは無置換の芳香族炭化水素環基又は芳香族複素環基を表わし、 $R^{13}$ と $R^{14}$ 、 $R^{15}$ と $R^{16}$ 、 $R^{17}$ と $R^{18}$ は、それぞれ隣接する置換基同士で環を形成してもよい。

)



(19)

(式中、Rは、アルキル基、アラルキル基、置換もしくは無置換のアミノ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、カルボキシ基、アルコキシ基、アルキルアミノ基、アラルキルアミノ基、ハロアルキル基、水酸基、アリアルオキシ基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素環基又は芳香族複素環基である。)

本発明の有機EL素子の素子構成としては、陽極／発光層／電子注入層／陰極、陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極、陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極、陽極／絶縁層／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極等の構造が挙げられる。

本発明の有機EL素子は、電子注入層と陰極との間に絶縁体や半導体で構成される無機化合物層や電子輸送層を設けてもよい。これらの層は、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。

このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子輸送層がこれらのアルカリ金属カルコゲナイド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲナイドとしては、例えば、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、 $\text{LiO}$ 、 $\text{Na}_2\text{S}$ 、 $\text{Na}_2\text{Se}$ 、 $\text{NaO}$ 等が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲナイドとしては、例えば、 $\text{CaO}$ 、 $\text{BaO}$ 、 $\text{SrO}$ 、 $\text{BeO}$ 、 $\text{BaS}$ 、 $\text{CaSe}$ が挙げ

られる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、 $\text{LiF}$ 、 $\text{NaF}$ 、 $\text{KF}$ 、 $\text{LiCl}$ 、 $\text{KCl}$ 、 $\text{NaCl}$ 等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、 $\text{CaF}_2$ 、 $\text{BaF}_2$ 、 $\text{SrF}_2$ 、 $\text{MgF}_2$ 、 $\text{BeF}_2$ 等のフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

電子輸送層を構成する半導体としては、 $\text{Ba}$ 、 $\text{Ca}$ 、 $\text{Sr}$ 、 $\text{Yb}$ 、 $\text{Al}$ 、 $\text{Ga}$ 、 $\text{In}$ 、 $\text{Li}$ 、 $\text{Na}$ 、 $\text{Cd}$ 、 $\text{Mg}$ 、 $\text{Si}$ 、 $\text{Ta}$ 、 $\text{Sb}$ 及び $\text{Zn}$ の少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等の一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子輸送層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子輸送層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、上述したアルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

正孔注入・輸送層は、発光層への正孔注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが通常 $5.5\text{ eV}$ 以下と小さい。このような正孔注入・輸送層としてはより低い電界強度で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば $10^4 \sim 10^6\text{ V/cm}$ の電界印加時に、 $10^{-6}\text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{秒}$ 以上であるものが好ましく、 $10^{-5}\text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{秒}$ 以上であるものがさらに好ましい。

さらに、有機EL素子の陽極は、正孔を正孔輸送層又は発光層に注入する役割を担うものであり、 $4.5\text{ eV}$ 以上の仕事関数を有すると効果的である。本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金（ITO）、酸化錫（NE SA）、金、銀、白金、銅等が挙げられる。また、陰極としては、電子輸送層又は発光層に電子を注入するために、仕事関数の小さい材料が好ましい。陰極の材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マ

グネシウム、マグネシウム－インジウム合金、マグネシウム－アルミニウム合金、アルミニウム－リチウム合金、アルミニウム－スカンジウム－リチウム合金、マグネシウム－銀合金等が挙げられる。

本発明の有機EL素子における各層の形成方法は特に限定されず、従来公知の真空蒸着法、スピンコーティング法等による形成方法を用いることができる。本発明の有機EL素子に用いる有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法（MBE法）あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャストリング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

本発明の有機EL素子における各有機薄膜層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数nmから1 $\mu$ mの範囲が好ましい。

次に、実施例を用いて本発明をさらに詳しく説明すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

なお、化合物の三重項エネルギー、一重項エネルギー及びイオン化ポテンシャルは、以下のようにして測定した。

#### （１）三重項エネルギーの測定

最低励起三重項エネルギー準位T<sub>1</sub>を測定した。すなわち、試料の燐光スペクトルを測定し（10 $\mu$ mol／リットル EPA（ジエチルエーテル：イソペンタン：エタノール＝5：5：2容積比）溶液、77K、石英セル、SPEX社FLUOROLOGII）、燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対して接線を引き横軸との交点である波長（発光端）を求めた。この波長をエネルギー値に換算した。

#### （２）一重項エネルギー（エネルギーギャップ）の測定

励起一重項エネルギーの値を測定した。すなわち、試料のトルエン溶液（ $10^{-5}$ モル／リットル）を用い日立社製紫外可視吸光計を用い吸収スペクトルを測定した。スペクトルの長波長側の立ち上りに対し接線を引き横軸との交点である波長（吸収端）を求めた。この波長をエネルギー値に換算した。

### （３）イオン化ポテンシャルの測定

理研計器社製、大気下光電子分光装置AC-1にて材料粉末を用い測定した。

#### 実施例 1

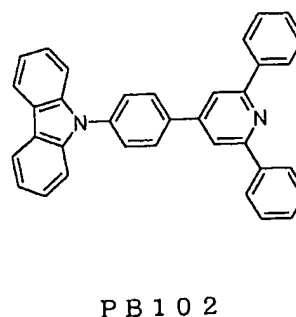
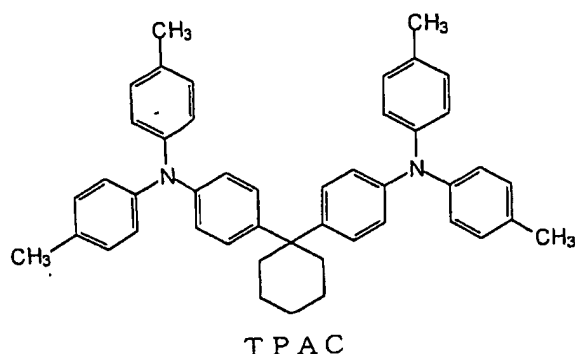
25 mm×75 mm×1.1 mm厚のITO透明電極付きガラス基板（ジオマテック社製）をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分間行なった。洗浄後の透明電極付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極が形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして膜厚10 nmの銅フタロシアニン膜（以下「CuPc膜」と略記する。）を成膜した。このCuPc膜は、正孔注入層として機能する。CuPc膜上に膜厚30 nmの下記TPACを成膜した。このTPAC膜は正孔輸送層として機能する。さらに、TPAC膜上に膜厚30 nmの下記化合物PB102を蒸着し発光層を成膜した。同時に燐光性のIr金属錯体として前記（K-3）を添加した。（K-3）の濃度は発光層中7重量％である。この膜は、発光層として機能する。この膜上に膜厚20 nmのトリス（8-キノリノール）Al錯体（以下、Alqという）を設けた。このAlq膜は、電子注入層として機能する。この後、還元性ドーパントであるLi（Li源：サエスゲッター社製）とAlqとを、モル比でAlq：Li=1：1で二元蒸着させ、陰極側の電子注入層としてAlq：Li膜を10 nm形成した。このAlq：Li膜上に金属Alを蒸着させ金属陰極を形成し有機EL素子を作製した。

発光層中のホスト材料の種類、イオン化ポテンシャル、エネルギーギャップ（一重項エネルギー）及び三重項エネルギー、発光層中の燐光性の発光材料（金属錯体）の種類及び三重項エネルギー、電子注入層中の電子輸送材料の種類、エネ



ルギーギャップ及び三重項エネルギーの値、並びに正孔輸送層の材料を表 1 に示す。

また、得られた素子について、特性を評価したところ、直流電圧 6.6 V で発光輝度  $89 \text{ cd/m}^2$ 、発光効率  $15.0 \text{ cd/A}$  の青緑色発光が得られた。また、EL スペクトルを計測したところ発光ピーク波長は  $477 \text{ nm}$  であり、Ir 金属錯体から発光が生じていることが示された。これらの結果を表 1 に示す。なお、後述するように電子注入層に用いた Alq のエネルギーギャップは発光層のホスト材料及び Ir 錯体のエネルギーギャップより小さく、電子注入層に用いる Alq の三重項エネルギーは、発光層のホスト化合物及び三重項エネルギーより小さいにもかかわらず、低電圧で高効率な青緑色発光が得られた。



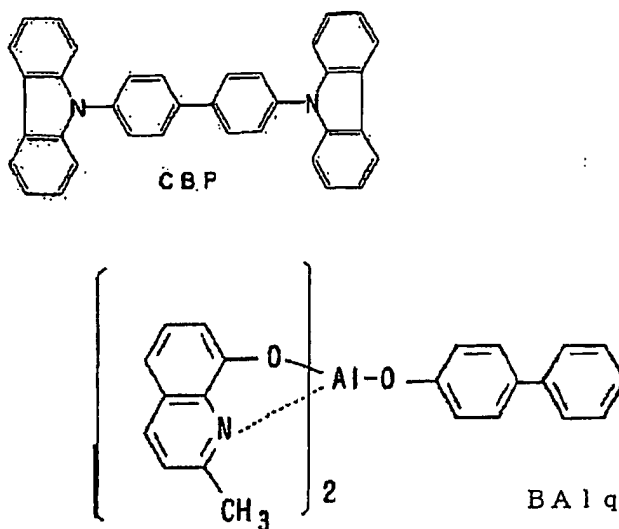
#### 比較例 1 (正孔輸送性発光層と正孔阻止層を用いた比較例)

25 mm × 75 mm × 1.1 mm 厚の ITO 透明電極付きガラス基板 (ジオマテック社製) をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。洗浄後の透明電極付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極が形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして膜厚 10 nm の銅フタロシアニン膜 (以下「CuPc 膜」と略記する。) を成膜した。この CuPc 膜は、正孔注入層として機能する。CuPc 膜の成膜に続けて、この膜上に膜厚 30 nm の前記 NPD を成膜した。この NPD 膜は正孔輸送層として機能する。さらに、NPD 膜の成膜に続けて

膜上に膜厚 30 nm の正孔輸送性の下記 CBP をホスト材料として蒸着し発光層を成膜した。同時に燐光性の Ir 金属錯体として前記 (K-3) を添加した。(K-3) の濃度は発光層中 7 重量%であった。この膜は、発光層として機能する。この膜上に膜厚 10 nm の (1, 1'-ビスフェニル)-4-オラート)ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム(以下、BALq という)を設けた。この BALq 膜は正孔阻止層として機能する。この後、還元性ドーパントである Li (Li 源: サエスゲッター社製) と Alq とを、モル比で Alq : Li = 1 : 1 で二元蒸着させ、陰極側の電子注入層として Alq : Li 膜を 10 nm 形成した。この Alq : Li 膜上に金属 Al を蒸着させ金属陰極を形成し有機 EL 素子を作製した。

発光層中のホスト材料の種類、イオン化ポテンシャル、エネルギーギャップ(一重項エネルギー)及び三重項エネルギー、発光層中の燐光性の発光材料(金属錯体)の種類及び三重項エネルギー、電子注入層中の電子輸送材料の種類、エネルギーギャップ及び三重項エネルギーの値、並びに正孔輸送層の材料を表 1 に示す。

また、得られた素子について、特性を評価したところ、直流電圧 7.2 V で発光輝度 98 cd/m<sup>2</sup>、発光効率 3.2 cd/A の青緑色発光が得られたが、実施例に比較して非常に低い発光効率であった。これは、発光層に正孔輸送性の化合物をホスト材料として用いたため、発光層の励起状態が失活し、消光しているためである。これらの結果を表 1 に示す。



#### 比較例 2（正孔輸送性発光層を用いた比較例）

実施例 1 において、発光層のホスト材料として、化合物 P B 1 0 2 の代わりに正孔輸送性の前記 C B P を用いたこと以外は同様にして有機 E L 素子を作製した。

発光層中のホスト材料の種類、イオン化ポテンシャル、エネルギーギャップ（一重項エネルギー）及び三重項エネルギー、発光層中の燐光性の発光材料（金属錯体）の種類及び三重項エネルギー、電子注入層中の電子輸送材料の種類、エネルギーギャップ及び三重項エネルギーの値、並びに正孔輸送層の材料を表 1 に示す。

また、得られた素子について、特性を評価したところ、直流電圧 6.8 V で発光輝度 1.2 cd/m<sup>2</sup>、発光効率 0.3 cd/A の青緑色発光しか得られず、発光効率が非常に低かった。これは、発光層に正孔輸送性の化合物をホスト材料として用いたため、発光層の励起状態が失活し、消光しているためである。また、比較例 1 と比較して、ある程度の発光効率を得るためには、正孔阻止層が必要であることも判明した。これらの結果を表 1 に示す。

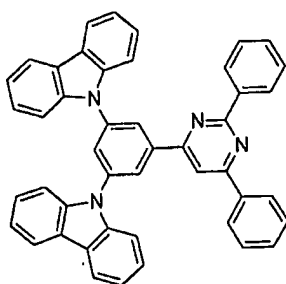
#### 実施例 2

実施例 1 において、発光層のホスト材料として、化合物 P B 1 0 2 の代わりに

電子輸送性の下記PB115を用いたこと以外は同様にして有機EL素子を作製した。

発光層中のホスト材料の種類、イオン化ポテンシャル、エネルギーギャップ（一重項エネルギー）及び三重項エネルギー、発光層中の燐光性の発光材料（金属錯体）の種類及び三重項エネルギー、電子注入層中の電子輸送材料の種類、エネルギーギャップ及び三重項エネルギーの値、並びに正孔輸送層の材料を表1に示す。

また、得られた素子について、特性を評価したところ、直流電圧6.5Vで発光輝度102cd/m<sup>2</sup>、発光効率14.8cd/Aの青緑色発光という極めて高い効率が得られた。これらの結果を表1に示す。



PB115

### 実施例3

実施例1において、電子注入層を形成するAlq及びAlq:Liの代わりに前記BALqを用い、BALqの陰極側20nmにはLiを添加したこと以外は同様にして有機EL素子を作製した。この場合、発光層は電子注入層に直接接合し、さらにBALq層に陰極が接合している。

発光層中のホスト材料の種類、イオン化ポテンシャル、エネルギーギャップ（一重項エネルギー）及び三重項エネルギー、発光層中の燐光性の発光材料（金属錯体）の種類及び三重項エネルギー、電子注入層中の電子輸送材料の種類、エネルギーギャップ及び三重項エネルギーの値、並びに正孔輸送層の材料を表1に示す。

また、得られた素子について、特性を評価したところ、直流電圧 7.8 V で発光輝度  $93 \text{ cd/m}^2$ 、発光効率  $12.3 \text{ cd/A}$  の青緑色発光という極めて高い効率が得られた。これらの結果を表 1 に示す。

#### 実施例 4

25 mm × 75 mm × 1.1 mm 厚の ITO 透明電極付きガラス基板（ジオマティック社製）をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。洗浄後の透明電極付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極が形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして膜厚 50 nm の前記 NPD を成膜した。この NPD 膜は正孔輸送層として機能する。さらに、NPD 膜上に膜厚 30 nm の電子輸送性の前記 PB115 をホスト材料として蒸着し発光層を成膜した。同時に燐光性の Ir 金属錯体として前記 (K-10) を添加した。(K-10) の濃度は発光層中 5 重量%である。この膜は、発光層として機能する。この膜上に膜厚 10 nm の Alq を電子注入層として蒸着した。この後、還元性ドーパントである Li (Li 源：サエスゲッター社製) と Alq とを、モル比で Alq : Li = 1 : 1 で二元蒸着させ、陰極側の電子注入層として Alq : Li 膜を 30 nm 形成した。この Alq : Li 膜上に金属 Al を蒸着させ金属陰極を形成し有機 EL 素子を作製した。

発光層中のホスト材料の種類、イオン化ポテンシャル、エネルギーギャップ（一重項エネルギー）及び三重項エネルギー、発光層中の燐光性の発光材料（金属錯体）の種類及び三重項エネルギー、電子注入層中の電子輸送材料の種類、エネルギーギャップ及び三重項エネルギーの値、並びに正孔輸送層の材料を表 1 に示す。

また、得られた素子について、特性を評価したところ、直流電圧 4.5 V で発光輝度  $620 \text{ cd/m}^2$ 、発光効率  $32.5 \text{ cd/A}$  の緑色発光が得られた。これらの結果を表 1 に示す。

### 比較例 3（正孔輸送性発光層を用いた比較例）

実施例 4 において、発光層のホスト材料として、化合物 P B 1 1 5 の代わりに正孔輸送性の前記 C B P を用いたこと以外は同様にして有機 E L 素子を作製した。

発光層中のホスト材料の種類、イオン化ポテンシャル、エネルギーギャップ（一重項エネルギー）及び三重項エネルギー、発光層中の燐光性の発光材料（金属錯体）の種類及び三重項エネルギー、電子注入層中の電子輸送材料の種類、エネルギーギャップ及び三重項エネルギーの値、並びに正孔輸送層の材料を表 1 に示す。

また、得られた素子について、特性を評価したところ、直流電圧 5. 1 V で発光輝度 1 0 1 c d / m<sup>2</sup>、発光効率 5. 7 c d / A の緑色発光しか得られず、発光効率が低かった。これは、発光層に正孔輸送性の化合物をホスト材料として用いたため、発光層の励起状態が失活し、消光しているためである。これらの結果を表 1 に示す。

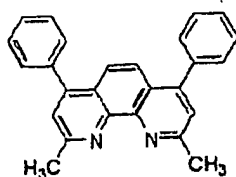
### 比較例 4（イオン化ポテンシャルが 5. 9 e V より大きいホスト材料を含む電子輸送性発光層を用いた比較例）

実施例 4 において、発光層のホスト材料として、化合物 P B 1 1 5 の代わりに電子輸送性の下記 B C P を用いたこと以外は同様にして有機 E L 素子を作製した。

発光層中のホスト材料の種類、イオン化ポテンシャル、エネルギーギャップ（一重項エネルギー）及び三重項エネルギー、発光層中の燐光性の発光材料（金属錯体）の種類及び三重項エネルギー、電子注入層中の電子輸送材料の種類、エネルギーギャップ及び三重項エネルギーの値、並びに正孔輸送層の材料を表 1 に示す。

また、得られた素子について、特性を評価したところ、直流電圧 6. 2 V で発光輝度 3 2 0 c d / m<sup>2</sup>、発光効率 3 0. 2 c d / A の緑色発光が得られ、発光

層の消光は免れている。しかし、実施例 4 の有機 EL 素子と同程度の発光効率を得るために、1.7 V 高い電圧が必要であった。これは、BCP のイオン化ポテンシャルが高いため、正孔が注入できないためである。これらの結果を表 1 に示す。



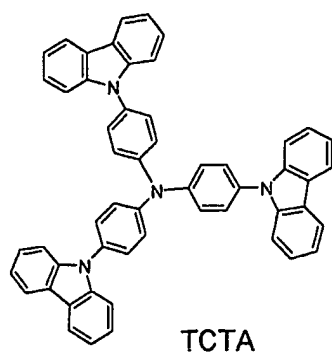
B C P

#### 実施例 5

実施例 2 において、正孔輸送層の材料として、TPAC の代わりに下記 TCTA を用い、燐光性の Ir 金属錯体として (K-3) を添加したかわりに前記 (K-23) を用い、電子注入層中の電子輸送材料として Alq の代わりに前記 (A-7) を用いた以外は同様にして有機 EL 素子を作製した。

発光層中のホスト材料の種類、イオン化ポテンシャル、エネルギーギャップ（一重項エネルギー）及び三重項エネルギー、発光層中の燐光性の発光材料（金属錯体）の種類及び三重項エネルギー、電子注入層中の電子輸送材料の種類、エネルギーギャップ及び三重項エネルギーの値、並びに正孔輸送層の材料を表 1 に示す。

また、得られた素子について、特性を評価したところ、直流電圧 6.0 V で発光輝度 104 cd/m<sup>2</sup>、発光効率 20.8 cd/A の青緑色発光という極めて高い効率が得られた。これらの結果を表 1 に示す。



### 実施例 6

実施例 5 において、電子注入層中の電子輸送材料として (A-7) の代わりに前記 (C-15) を用いた以外は同様にして有機 EL 素子を作製した。

発光層中のホスト材料の種類、イオン化ポテンシャル、エネルギーギャップ（一重項エネルギー）及び三重項エネルギー、発光層中の燐光性の発光材料（金属錯体）の種類及び三重項エネルギー、電子注入層中の電子輸送材料の種類、エネルギーギャップ及び三重項エネルギーの値、並びに正孔輸送層の材料を表 1 に示す。

また、得られた素子について、特性を評価したところ、直流電圧 6.1 V で発光輝度 105 cd/m<sup>2</sup>、発光効率 23.1 cd/A の青緑色発光という極めて高い効率を得られた。これらの結果を表 1 に示す。

### 比較例 5（正孔輸送性発光層を用いた比較例）

実施例 5 において、発光層のホスト材料として、化合物 PB115 の代わりに正孔輸送性の前記 CBP を用いたこと以外は同様にして有機 EL 素子を作製した。

発光層中のホスト材料の種類、イオン化ポテンシャル、エネルギーギャップ（一重項エネルギー）及び三重項エネルギー、発光層中の燐光性の発光材料（金属錯体）の種類及び三重項エネルギー、電子注入層中の電子輸送材料の種類、エネルギーギャップ及び三重項エネルギーの値、並びに正孔輸送層の材料を表 1 に示す。



また、得られた素子について、特性を評価したところ、直流電圧 6.3 V で発光輝度  $102 \text{ cd/m}^2$ 、発光効率  $9.2 \text{ cd/A}$  の青緑色発光しか得られず、実施例 5 に比べ著しく発光効率が低かった。これは、発光層に正孔輸送性の化合物をホスト材料として用いたため、発光層の励起状態が失活し、消光しているためである。これらの結果を表 1 に示す。

比較例 6 (イオン化ポテンシャルが 5.9 eV より大きいホスト材料を含む電子輸送性発光層を用いた比較例)

実施例 5 において、発光層のホスト材料として、化合物 P B 1 1 5 の代わりに電子輸送性の下記 T P B I (2,2',2''-(1,3,5-フェニレン)トリス[1-フェニル-1H-ベンズイミダゾール]:特開平 10-106749 号公報に合成法記載)を用いたこと以外は同様にして有機 E L 素子を作製した。

発光層中のホスト材料の種類、イオン化ポテンシャル、エネルギーギャップ(一重項エネルギー)及び三重項エネルギー、発光層中の燐光性の発光材料(金属錯体)の種類及び三重項エネルギー、電子注入層中の電子輸送材料の種類、エネルギーギャップ及び三重項エネルギーの値、並びに正孔輸送層の材料を表 1 に示す。

また、得られた素子について、特性を評価したところ、直流電圧 7.6 V で発光輝度  $102 \text{ cd/m}^2$ 、発光効率  $14.6 \text{ cd/A}$  の青緑色発光が得られ、発光層の消光は免れている。しかし、実施例 5 の有機 E L 素子と同程度の発光効率を得るために、1.6 V も高い電圧が必要であった。これは、T P B I のイオン化ポテンシャルが高いため、正孔が注入されにくいためである。これらの結果を表 1 に示す。

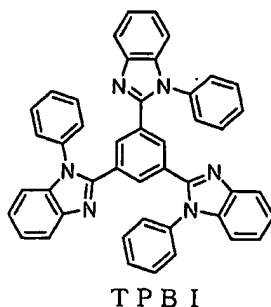


表 1

	発光層										電子注入層				正孔輸送層	有機EL素子の特性評価			
	ホスト材料				燐光性金属錯体		電子輸送材料				正孔輸送材 料の種類	電圧 (V)	発光輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	発光効率 (cd/A)		発光色			
	種類	イオン化ポ テンシャル (eV)	エネルギー ギャップ (eV)	三重項エ ネルギー (eV)	種類	三重項エ ネルギー (eV)	エネルギー ギャップ (eV)	三重項エ ネルギー (eV)											
実施例1	PB102	5.74	3.48	2.81	K-3	2.76	Alq	2.7	2.51	TPAC	6.6	89	15.0	青緑色					
実施例2	PB115	5.71	3.2	2.9	K-3	2.76	Alq	2.7	2.51	TPAC	6.5	102	14.8	青緑色					
実施例3	PB102	5.74	3.48	2.81	K-3	2.76	BAIq	2.85	不明	TPAC	7.8	93	12.3	青緑色					
実施例4	PB115	5.71	3.2	2.9	K-10	2.55	Alq	2.7	2.51	TPAC	4.5	620	32.5	緑色					
比較例1	CBP	5.86	3.56	2.81	K-3	2.76	BAIq※	2.85	不明	TPAC	7.2	98	3.2	青緑色					
比較例2	CBP	5.86	3.56	2.81	K-3	2.76	BAIq	2.85	不明	TPAC	6.8	1.2	0.3	青緑色					
比較例3	CBP	5.86	3.56	2.81	K-10	2.55	Alq	2.7	2.51	TPAC	5.1	101	5.7	緑色					
比較例4	BCP	6.4	3.5	2.69	K-10	2.55	Alq	2.7	2.51	TPAC	6.2	320	30.2	緑色					
実施例5	PB115	5.71	3.2	2.9	K-23	2.75	(A-7)	2.97	2.7	TCTA	6.0	104	20.8	青緑色					
実施例6	PB115	5.71	3.2	2.9	K-23	2.75	(C-15)	3.04	2.74	TCTA	6.1	105	23.1	青緑色					
比較例5	CBP	5.86	3.56	2.81	K-23	2.75	(A-7)	2.97	2.7	TCTA	6.3	102	9.2	青緑色					
比較例6	TPBI	6.7	4	2.8	K-23	2.75	(A-7)	2.97	2.7	TCTA	7.6	102	14.6	青緑色					

※比較例1のBAIqは正孔阻止層

表 1 に示したように、実施例 1 ～ 6 の有機 EL 素子において、発光層中のホスト材料のエネルギーギャップは電子注入層中の電子輸送材料のエネルギーギャップより大きいのでエネルギー移動が生じ、励起状態が消光する可能性がある。また、発光層中のホスト材料の三重項エネルギー及び金属錯体の三重項エネルギーは、電子注入層中の電子輸送材料の三重項エネルギーより大きいのでエネルギー移動が生じ、励起状態が消光する可能性もある。しかし、電子輸送性の発光層を用いたことにより、高発光効率が可能になった。

また、実施例 4 と比較例 4、及び実施例 5 と比較例 6 をそれぞれ比べると、発光層中のホスト材料のイオン化ポテンシャルが小さいので、低電圧駆動が可能になることが判明した。

これらに対し、比較例 1 ～ 3 及び比較例 5 の素子は励起状態が消光していることを示し、発光効率が低い。

#### 産業上の利用可能性

以上詳細に説明したように、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、素子を構成する発光層及び電子注入層が特定の条件を満たし、電子輸送性の発光層を用いているため、燐光性の発光を用い、発光効率が高い。このため、フルカラー用の有機エレクトロルミネッセンス素子として有用である。

## 請求の範囲

1. 陰極と陽極間に、少なくとも燐光性の発光材料とホスト材料からなる発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層と陰極との間に、発光層と接合した電子注入層を有し、

発光層が電子輸送性で、前記ホスト材料のイオン化ポテンシャルが5.9 eV以下であり、

電子注入層中の電子輸送材料のエネルギーギャップが、発光層中のホスト材料のエネルギーギャップより小さいことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

2. 陰極と陽極間に、少なくとも燐光性の発光材料とホスト材料からなる発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層と陰極との間に、発光層と接合した電子注入層を有し、

発光層が電子輸送性で、前記ホスト材料のイオン化ポテンシャルが5.9 eV以下であり、

電子注入層中の電子輸送材料の三重項エネルギーが、発光層中のホスト材料の三重項エネルギーより小さいことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

3. 還元性ドーパントが、電子注入層に添加されているか、又は陰極と該陰極と接合する層との界面領域に添加されていることを特徴とする請求項1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

4. 陰極と陽極間に、燐光性の発光材料が添加されている正孔輸送層を有することを特徴とする請求項1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

5. 前記正孔輸送層中の正孔輸送材料の三重項エネルギーが、発光層中の燐光性の発光材料の励起エネルギーより大きいことを特徴とする請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

6. 前記発光層中のホスト材料が電子輸送性である請求項1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
7. 前記発光層中のホスト材料の電子輸送度が $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上である請求項6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
8. 前記電子輸送材料が、単一種の含窒素環誘導体が配位した金属錯体である請求項1又は2のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
9. 前記含窒素環が、キノリン、フェニルピリジン、ベンゾキノリン又はフェナントリンである請求項8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
10. 前記金属錯体が、キノリノールの金属錯体又はその誘導体である請求項8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
11. 前記電子輸送材料が、含窒素環と縮合芳香族環が連結した化合物、又は含窒素環がアリーレン基を介して縮合芳香族環と連結した化合物（含窒素環、縮合芳香族環及びアリーレン基は、それぞれ置換基を有していてもよい）である請求項1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
12. 前記縮合芳香族環が、ナフタレン、アントラセン、ピレン、フェナントレン、フルオランテン、クリセン、ベリレン、ナフタセン又はペンタセンである請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
13. 前記含窒素環が、6員環と5員環の縮合環であり、1～4個の窒素原子を有する請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
14. 前記ホスト材料が、カルバゾリル基もしくはアザカルバゾリル基が含窒素環に連結した化合物、又はカルバゾリル基もしくはアザカルバゾリル基がアリーレン基を介して含窒素環に連結した化合物（カルバゾリル基、アザカルバゾリル基、含窒素環及びアリーレン基は、それぞれ置換基を有していてもよい）である請求項1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
15. 前記含窒素環が、ピリジン、キノリン、ピラジン、ピリミジン、キノキサリン、トリアジン、イミダゾール、イミダゾピリジン、ピリダジン又はベンズ

イミダゾールである請求項 1 4 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/12598

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> H05B33/22, H05B33/14

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> H05B33/00-33/28

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2003  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2003 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

DIALOG(WPI), AIP Online Journal, Web of Science

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,X	JP 2002-352957 A (Honda Motor Co., Ltd.), 06 December, 2002 (06.12.02), Claims; Par. Nos. [0119] to [0129] (Family: none)	1,6-10
P,X	JP 2003-77673 A (Honda Motor Co., Ltd.), 14 March, 2003 (14.03.03), Par. Nos. [0123] to [0130] (Family: none)	1,6-10
A	JP 2002-151267 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 24 May, 2002 (24.05.02), Claims (Family: none)	1-15

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
"E" earlier document but published on or after the international filing date  
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
28 October, 2003 (28.10.03)

Date of mailing of the international search report  
18 November, 2003 (18.11.03)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/12598

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2002-56976 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 22 February, 2002 (22.02.02), (Family: none)	1-15
A	WO 02/51206 A (THE TRUSTEES OF PRINCETON UNIVERSITY), 27 June, 2002 (27.06.02), & US 2002/0113545 A1 & AU 200229047 A & TW 524027 A	1-15
A	ADACHI, BALDO et al., "Nearly 100% internal phosphorescence efficiency in an organic light emitting device", JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, Vol.90, No.10, pages 5048 to 5051, (2001)	1
A	JP 8-319482 A (Philips Electronics N.V.), 03 December, 1996 (03.12.96), & EP 697744 A & US 5756224 A	2
A	WO 01/72927 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 04 October, 2001 (04.10.01), & US 2002/0045061 A1 & EP 1205527 A & KR 2002026866 A & CN 1365381 A	3
A	WO 02/071813 A (THE TRUSTEES OF PRINCETON UNIVERSITY), 12 September, 2002 (12.09.02), & US 2002/0180347 A1	4



## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H05B33/22, H05B33/14

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H05B33/00-33/28

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2003年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2003年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

DIALOG (WPI)  
 AIP Online Journal  
 Web of Science

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
P, X	JP 2002-352957 A (本田技研工業株式会社) 2002. 12. 06, 特許請求の範囲, 【0119】 - 【0129】 (ファミリーなし)	1, 6-10
P, X	JP 2003-77673 A (本田技研工業株式会社) 2003. 03. 14, 【0123】 - 【0130】 (ファミリーなし)	1, 6-10

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

28. 10. 03

国際調査報告の発送日

18.11.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

今関 雅子

2V 9529

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2002-151267 A (富士写真フイルム株式会社) 2002. 05. 24, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-15
A	JP 2002-56976 A (富士写真フイルム株式会社) 2002. 02. 22 (ファミリーなし)	1-15
A	WO 02/51206 A (THE TRUSTEES OF PRINCETON UNIVERSITY) 2002. 06. 27 &US 2002/0113545 A1 &AU 200229047 A &TW 524027 A	1-15
A	ADACHI, BALDO et.al, "Nearly 100% internal phosphorescence efficiency in an organic light emitting device" JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, Vol.90, No.10, pp.5048-5051 (2001)	1
A	JP 8-319482 A (フィリップス エレクトロニクス ネムローセ フェノートシヤップ) 1996. 12. 03 &EP 697744 A &US 5756224 A	2
A	WO 01/72927 A (出光興産株式会社) 2001. 10. 04 &US 2002/0045061 A1 &EP 1205527 A &KR 2002026866 A &CN 1365381 A	3
A	WO 02/071813 A (THE TRUSTEES OF PRINCETON UNIVERSITY) 2002. 09. 12 &US 2002/0180347 A1	4